



TESIS - SK142502

**PENGARUH SUHU DAN WAKTU HIDROTERMAL
PADA SINTESIS ZEOLIT-X BERPENDUKUNG SERAT
GLASSWOOL UNTUK ADSORPSI-DESORPSI CO₂**

**ANGGITA RARA KUMALA WARDANI
NRP. 1414 201 030**

**DOSEN PEMBIMBING
NURUL WIDIASTUTI, M.Si., Ph.D**

**PROGRAM MAGISTER
BIDANG KEAHLIAN KIMIA FISIKA
JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2016**



THESIS - SK142502

**INFLUENCE OF HYDROTHERMAL TEMPERATURE
AND TIME AT SYNTHESIS OF ZEOLITE-X
SUPPORTED ON GLASSWOOL FIBER FOR CO₂
ADSORPTION-DESORPTION**

**ANGGITA RARA KUMALA WARDANI
NRP. 1414 201 030**

**SUPERVISOR
NURUL WIDIASTUTI, M.Si., Ph.D**

**MAGISTER PROGRAM
PHYSICAL CHEMISTRY
DEPARTMENT OF CHEMISTRY
FACULTY OF MATHEMATICS AND NATURAL SCIENCES
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2016**

Telah disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar
Magister Sains (M.Si)
di
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh :
ANGGITA RARA KUMALA WARDANI
NRP. 1414 201 030

Tanggal Ujian : Februari 2016
Tanggal Wisuda : Maret 2016

Disetujui oleh :


1. **Nurul Widiastuti, M.Si, Ph.D**
NIP. 19710425 199412 2 001

(Pembimbing)


2. **Dr. Ir. Endah Mutiara MP., M.Si**
NIP. 19560102 198502 2 001

(Penguji)


3. **Dr. Fahimah Martak, M.Si**
NIP. 1966 0703 199102 2 001

(Penguji)


4. **Suprpto, M.Si, Ph.D**
NIP. 1972 0919 199800 1 002

(Penguji)


Direktur Program Pascasarjana,


Prof. Ir. Djauhar Manfaat, M.Sc, Ph.D
NIP. 19601202 198701 1 001

PENGARUH SUHU DAN WAKTU HIDROTERMAL PADA SINTESIS ZEOLIT X BERPENDUKUNG SERAT *GLASSWOOL* UNTUK ADSORPSI-DESORPSI CO₂

Nama : Anggita Rara Kumala Wardani

NRP : 1414 201 030

Jurusan : Kimia ITS

Pembimbing : Nurul Widiastuti, M.Si, Ph.D

Abstrak

Pada penelitian ini telah disintesis zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dengan variasi suhu hidrotermal 90°C - 120°C dan waktu hidrotermal 72 jam – 144 jam. Material dengan kristalinitas relatif paling tinggi, didapatkan pada kondisi hidrotermal suhu 100°C selama 120 jam (ZXF100-120J). Uji adsorpsi-desorpsi dilakukan dengan metode gravimetri pada variasi suhu 30°C, 40°C dan 50°C. Hasil menunjukkan bahwa kapasitas adsorpsi CO₂ berturut-turut sebesar 24,5 ; 15,3 dan 12,5 % berat, sedangkan jumlah CO₂ yang dilepaskan kembali pada suhu 30, 40 dan 50°C pada tekanan 1 bar berturut-turut sebesar 76,6 ; 83,6 dan 89,5 % berat.

Kata kunci: Zeolit-X, serat *glasswool*, CO₂, adsorpsi-desorpsi, termodinamika, kinetika

INFLUENCE OF HYDROTHERMAL TEMPERATURE AND TIME AT SYNTHESIS OF ZEOLITE X SUPPORTED ON GLASSWOOL FIBER FOR CO₂ ADSORPTION-DESORPTION

Name : Anggita Rara Kumala Wardani

NRP : 1414 201 030

Department : Chemistry ITS

Supervisor : Nurul Widiastuti, M.Si, Ph.D

Abstract

Zeolite-X supported on glasswool fiber synthesized with variation of hydrothermal temperature between 90°C-120°C and hydrothermal time between 72 hours-144 hours. Materials which have highest relative crystallinity, obtained at 100°C during 120 hours hydrothermal condition. Carbon dioxide adsorption-desorption on zeolite X supported on glasswool fiber will be conducted with gravimetric method at temperature range 30°C, 40°C and 50°C. Results indicate that the adsorption capacity of CO₂ was 24.5, 15.3 and 12.5 wt.% , while the amount of desorption was 76.6 ; 83.6 dan 89.5 wt.%.

Keywords: Zeolite-X, glasswool fiber, CO₂, adsorption-desorption, kinetics, thermodynamics

KATA PENGANTAR

Alhamdulillah segala puji syukur penulis panjatkan kepada Allah SWT atas curahan rahmat dan karunia-Nya sehingga penulis dapat menyusun TESIS yang berjudul **“Pengaruh Suhu dan Waktu Hidrotermal Pada Sintesis Zeolit X Berpendukung Serat *Glasswool* untuk Adsorpsi-Desorpsi CO₂”**.

Penulis mengucapkan terima kasih kepada semua pihak yang telah membantu dan memberikan dukungan dalam penyusunan PRA-TESIS ini. Ucapan terima kasih penulis sampaikan kepada:

1. Nurul Widiastuti, M.Si, Ph.D selaku dosen pembimbing atas semua bimbingan, masukan, arahan dan nasihat yang berharga dalam penyusunan Tesis ini, serta semua motivasi yang telah diberikan untuk selalu maju meraih mimpi dan cita-cita saya.
2. Prof. Mardi Santoso, Ph.D, selaku Kaprodi Magister Kimia ITS
3. Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc, selaku Ketua Jurusan Kimia ITS
4. Dr. Ir. Endah Mutiara Marhaeni Putri, M.Si, selaku dosen wali atas semua arahan, nasihat dan bimbingannya.
5. Ibu tercinta atas dukungan serta doanya selama ini. Ibu adalah alasan untuk berjuang meraih semua mimpi.
6. Irma, Noby dan Lila, sahabat akrab yang selalu menyayangiku
7. Ema, Maya, Ulfi, Kia dan Hamdan, kalian adalah kakak sekaligus teman seperjuangan dalam berburu beasiswa untuk bisa kuliah (lagi).
8. Keluarga besar Kimia ITS angkatan 2010 “CHEMPION” dan Trainer Keilmiah Breakthrough yang selalu membagi kisah unik, aneh dan ceria denganku sampai detik ini.
9. Teman-teman S2 angkatan 2014, Kimia Fisik angkatan 2013 dan 2014 serta rekan-rekan satu grup penelitian terutama Mbak Mada, Mas Ibnu, Mbak Romaya, Zarah, Novia, Puput, Indri, Rahma dan Fita.
10. Semua pihak yang telah membantu yang tidak mungkin penulis sebutkan satu persatu.

Penulis menyadari bahwa dalam TESIS ini masih terdapat kekurangan, oleh karena itu kritik dan saran yang membangun sangat penulis harapkan. Semoga TESIS ini dapat memberi manfaat untuk perkembangan ilmu pengetahuan.

Surabaya, 25 Januari 2016

Penulis

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
HALAMAN PENGESAHAN	iii
ABSTRAK	iv
KATA PENGANTAR	vi
DAFTAR ISI	viii
DAFTAR GAMBAR	x
DAFTAR TABEL	xii
DAFTAR LAMPIRAN	xiii

BAB I PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Permasalahan.....	6
1.3 Tujuan Penelitian.....	6
1.4 Manfaat Penelitian.....	6

BAB II TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI

2.1 Emisi Gas CO ₂	7
2.2 Material Berpori Untuk Adsorpsi CO ₂	10
2.3 Zeolit X.....	12
2.3.1 Struktur Zeolit X.....	12
2.3.2 Sintesis Zeolit X Berpendukung Serat.....	14
2.4 Adsorpsi CO ₂ Pada Zeolit X.....	17
2.4.1 Prinsip dan Mekanisme Adsorpsi CO ₂	17
2.4.2 Selektivitas Terhadap CO ₂	20
2.5 Model Kinetika Adsorpsi.....	21
2.5.1 Orde Satu Semu.....	21
2.5.2 Orde Dua Semu.....	22
2.5.3 Difusi Intra Partikel.....	24

2.6	Studi Termodinamika Adsorpsi CO ₂	25
2.7	Karakterisasi.....	27
2.7.1	Difraksi Sinar X.....	27
2.7.2	<i>Scanning Electron Microscope</i> (SEM).....	28
2.7.3	TGA-DSC.....	29
2.8	Metode Pengujian Adsorpsi CO ₂	31
2.8.1	Metode Gravimetri.....	31
 BAB III METODOLOGI PENELITIAN		
3.1	Alat dan Bahan.....	33
3.1.1	Alat.....	33
3.1.2	Bahan.....	34
3.2	Prosedur Kerja.....	34
3.2.1	Aktivasi Serat <i>Glasswool</i>	34
3.2.2	Sintesis Zeolit X Berpendukung Serat.....	34
3.2.3	Karakterisasi Zeolit X Berpendukung Serat.....	35
3.2.3.1	XRD.....	35
3.2.3.2	TGA-DSC.....	35
3.2.3.3	SEM.....	36
3.2.3.4	Adsorpsi Gas Nitrogen.....	36
3.2.4	Penentuan Kapasitas Adsorpsi-Desorpsi CO ₂	36
3.2.4.1	Metode Gravimetri.....	36
3.2.5	Penentuan Model Kinetika Adsorpsi ₂	37
3.2.6	Penentuan Termodinamika Adsorpsi CO ₂	37
 BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN		
4.1	Sintesis Zeolit-X pada Permukaan <i>Glasswool</i>	39
4.2	Pengaruh Suhu dan Waktu Hidrotermal Terhadap Kristalinitas Zeolit-X di Atas Permukaan Serat <i>Glasswool</i>	41
4.2.1	Pengaruh Suhu Hidrotermal Terhadap Kristalinitas Zeolit-X Pada Permukaan <i>Glasswool</i>	42

4.2.2	Pengaruh Waktu Hidrotermal Terhadap Kristalinitas Zeolit-X Pada Permukaan <i>Glasswool</i>	46
4.2.3	Analisis ANOVA.....	51
4.3	Pemetaan Fasa Zeolit di Atas Permukaan Serat <i>Glasswool</i> Berdasarkan Suhu dan Waktu Hidrotermal.....	53
4.4	Analisis Termal Zeolit-X Berpendukung <i>Glasswool</i>	54
4.5	Pengujian Kapasitas Adsorpsi-Desorpsi CO ₂ pada Zeolit-X Berpendukung Serat <i>Glasswool</i>	57
4.5.1	Adsorpsi CO ₂ pada Zeolit-X Berpendukung Serat <i>Glasswool</i>	58
4.5.2	Desorpsi CO ₂ pada Zeolit-X Berpendukung Serat <i>Glasswool</i>	61
4.6	Model Kinetika Adsorpsi.....	64
4.7	Studi Termodinamika Adsorpsi.....	67

BAB V Kesimpulan dan Saran

5.1	Kesimpulan.....	71
5.2	Saran.....	72

DAFTAR PUSTAKA..... 73

LAMPIRAN..... 83

DAFTAR GAMBAR

	Halaman
Gambar 2.1	Konsentrasi gas karbon dioksida dari tahun 1958 hingga tahun 2015 dalam penelitian di Observatorium Mauna Loa, Hawaii. 7
Gambar 2.2	Pembentukan struktur kristal zeolit X 13
Gambar 2.3	Kerangka zeolit X 14
Gambar 2.4	Gambar AFM dari serat <i>glasswool</i> 15
Gambar 2.5	Proses kristalisasi zeolit pada serat teraktivasi 16
Gambar 2.6	Model sistem interaksi antar kutub-kutub bermuatan 18
Gambar 2.7	Sisi kation dalam kerangka zeolit X 18
Gambar 2.8	Struktur CO ₂ pada kerangka zeolit X saat terjadi fisisorpsi dan kemisorpsi 19
Gambar 2.9	Grafik model kinetika orde satu semu 22
Gambar 2.10	Grafik model kinetika orde dua semu 24
Gambar 2.11	Grafik model difusi intra partikel 24
Gambar 2.12	Grafik termodinamika adsorpsi 26
Gambar 2.13	Skema difraksi sinar X sesuai Hukum Bragg 27
Gambar 2.14	Pola XRD pada zeolit X 28
Gambar 2.15	Skema SEM 29
Gambar 2.16	Hasil SEM sintesis zeolit berpendukung serat dengan variasi waktu hidrotermal 29
Gambar 2.17	Kurva TGA dan DTG dari jenis zeolit X 30
Gambar 2.18	Kurva DSC zeolit-X dengan berbagai rasio Si/Al 31
Gambar 2.19	Skema Uji adsorpsi gas secara gravimetri 32
Gambar 3.1	Rangkaian metode gravimetri adsorpsi CO ₂ 33
Gambar 3.2	Rangkaian metode gravimetri Desorpsi CO ₂ 34
Gambar 4.1	Mekanisme aktivasi <i>glasswool</i> 40
Gambar 4.2	Ilustrasi pembentukan kristal zeolit dengan metode hidrotermal 41
Gambar 4.3	a) larutan gel zeolit sebelum proses hidrotermal, b) setelah proses hidrotermal, c) zeolit-X serat setelah proses pengeringan 41
Gambar 4.4	Pengaruh variasi suhu hidrotermal pada waktu hidrotermal konstan : (a) 72 jam (b) 96 jam (c) 120 jam dan (d) 144 jam 43

Gambar 4.5	Morfologi fasa zeolit pada permukaan serat glasswool dengan variasi suhu hidrotermal selama 120 jam	45
Gambar 4.6	Plot 3D kristalinitas relatif zeolit-X berpendukug serat dengan variasi suhu hidrotermal	46
Gambar 4.7	Pengaruh variasi waktu hidrotermal pada suhu hidrotermal konstan : (a) 90°C (b) 100°C (c) 110°C dan (d) 120°C	47
Gambar 4.8	Aturan Ostwald tentang perubahan fasa zeolit-X menjadi sodalit di atas permukaan serat <i>glasswool</i>	48
Gambar 4.9	Morfologi fasa zeolit pada permukaan serat glasswool pada suhu hidrotermal 100°C dengan variasi waktu hidrotermal	49
Gambar 4.10	Grafik kristalinitas relatif fasa zeolit pada permukaan serat glasswool pada suhu hidrotermal 100°C dengan variasi waktu hidrotermal, sesuai Gambar 4.9	50
Gambar 4.11	Plot 3D kristalinitas relatif zeolit-X berpendukug serat dengan variasi waktu hidrotermal pada suhu konstan 90°C, 100°C, 110°C dan 120°C	50
Gambar 4.12	Pemetaan fasa zeolit suhu 90°C - 150°C dan waktu hidrotermal 15 jam – 144 jam berdasarkan penelitian sebelumnya	54
Gambar 4.13	Kurva TG dan DTG dari serat glasswool ; zeolit X ; zeolit-X berpendukug glasswool (ZXF100-120J)	55
Gambar 4.14	Kurva DSC dari serat glasswool ; zeolit-X ; zeolit-X berpendukug glasswool (ZXF100-120J)	56
Gambar 4.15	Grafik adsorpsi CO ₂ pda material ZXF100-120J	58
Gambar 4.16	Ilustrasi proses adsorpsi CO ₂ dari material ZXF100-120J	60
Gambar 4.17	Grafik CO ₂ tersisa pada material ZXF100-120J	62
Gambar 4.18	Grafik CO ₂ terdesorp pada material ZXF100-120J	62
Gambar 4.18	Ilustrasi proses desorpsi CO ₂ dari material ZXF100-120J	63
Gambar 4.19	Plot model kinetika orde satu semu pada variasi suhu adsorpsi	65
Gambar 4.20	Plot model kinetika orde dua semu pada variasi suhu adsorpsi	66
Gambar 4.21	Plot model kinetika difusi intra partikel pada variasi suhu adsorpsi	66
Gambar 4.22	Grafik plot $\ln(P/P_0)$ terhadap $1/T$	68

DAFTAR TABEL

	Halaman
Tabel 2.1 Perbandingan metode pemisahan karbon dioksida	9
Tabel 2.2 Hasil penelitian adsorpsi karbon dioksida menggunakan material berpori	10
Tabel 2.3 Kapasitas adsorpsi CO ₂ pada beberapa jenis zeolit	11
Tabel 2.4 Suhu dan waktu hidrotermal untuk sintesis zeolit berpendukung serat	16
Tabel 2.5 Tabel ANOVA dua arah tanpa pengulangan	17
Tabel 2.6 Data molekul gas adsorbat	20
Tabel 2.7 Model kinetika adsorpsi gas pada material berpori	21
Tabel 2.8 Data termodinamika untuk adsorpsi karbon dioksida pada beberapa jenis zeolit	26
Tabel 4.1 Kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat <i>glasswool</i>	52
Tabel 4.2 Analisis ANOVA dua arah	52
Tabel 4.3 Analisa termal data termogram DSC	57
Tabel 4.5 Hasil adsorpsi CO ₂ pada variasi suhu dan tekanan 1 bar	59
Tabel 4.6 Hubungan antara kristalinitas relatif dan kapasitas adsorpsi CO ₂	61
Tabel 4.7 Hasil desorpsi CO ₂ pada variasi suhu dan tekanan 1 bar	62
Tabel 4.8 Parameter Kinetika Adsorpsi CO ₂ dengan Berbagai Model	65
Tabel 4.9 Parameter termodinamika adsorpsi CO ₂ pada ZXF100-120J	68

DAFTAR LAMPIRAN

	Halaman
LAMPIRAN A : SKEMA KERJA	
1. Aktivasi Serat <i>Glasswool</i>	83
2. Sintesis Zeolit-X Berpendukung Serat <i>Glasswool</i>	84
3. Uji Adsorpsi-Desorpsi CO ₂	85
LAMPIRAN B : PERHITUNGAN SINTESIS ZEOLIT-X	
1. Komposisi Bahan	86
2. Rasio Komposisi Molar Zeolit-X	86
3. Perhitungan massa yang dibutuhkan pada masing-masing bahan	86
LAMPIRAN C : DATA DIFRAKTOGRAM XRD ZEOLIT-X	
1. Variasi suhu dan waktu hidrotermal	89
2. Kristalinitas relatif	91
LAMPIRAN D : ANALISIS ANOVA	
1. Uji asumsi ANOVA	95
2. Analisis ANOVA dua arah tanpa pengulangan	97
LAMPIRAN E : DATA TGA-DSC	
1. Serat <i>glasswool</i>	99
2. Zeolit-X	100
3. Zeolit-X berpendukung serat <i>glasswool</i>	101
LAMPIRAN F : INTEGRASI LUAS PUNCAK DSC	
1. Zeolit-X	102
2. ZXF100-120J	102
LAMPIRAN G : PERHITUNGAN ADSORPSI CO₂	
1. Cara perhitungan kapasitas adsorpsi CO ₂ secara gravimetri	104
2. Kapasitas adsorpsi CO ₂ pada ZXF100-120J suhu 30°C	105
3. Kapasitas adsorpsi CO ₂ pada ZXF100-120J suhu 40°C	106
4. Kapasitas adsorpsi CO ₂ pada ZXF100-120J suhu 50°C	107
LAMPIRAN H : PERHITUNGAN DESORPSI CO₂	
1. Cara perhitungan kapasitas desorpsi karbon dioksida secara gravimetri	108
2. Kapasitas desorpsi CO ₂ pada ZXF100-120J suhu 30°C	109
3. Kapasitas desorpsi CO ₂ pada ZXF100-120J suhu 40°C	110

4. Kapasitas desorpsi CO ₂ pada ZXF100-120J suhu 50°C	111
--	-----

LAMPIRAN I : ANALISA DATA MODEL KINETIKA

ADSORPSI

1. Model orde satu semu	112
2. Model orde dua semu	115
3. Model difusi intra-partikel	119

LAMPIRAN J : PERHITUNGAN ENERGI AKTIVASI

LAMPIRAN K : ANALISA DATA TERMODINAMIKA

1. Penentuan Entalpi (ΔH^0) dan Entropi (ΔS^0)	124
2. Penentuan Energi Bebas Gibbs (ΔG)	125

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Karbon dioksida merupakan gas yang dianggap sebagai pemicu utama terjadinya fenomena pemanasan global. Gas karbon dioksida yang terakumulasi dalam atmosfer akan menyebabkan energi yang masuk ke bumi melewati atmosfer akan lebih banyak diserap daripada dipantulkan atau biasa disebut efek rumah kaca (Li dkk., 2013 dan Yang dkk., 2008). Kondisi tersebut menyebabkan suhu bumi menjadi lebih panas (Yang dkk., 2008) yang berakibat pada pencairan es di kutub utara, sehingga permukaan laut mengalami kenaikan dan suatu saat bisa menenggelamkan seluruh daratan di permukaan bumi (Figueroa dkk., 2011 dan Li dkk., 2011).

Gas CO₂ juga memberikan dampak buruk bagi kesehatan manusia dan lingkungan pada konsentrasi di atas 350 ppm. Saat ini, konsentrasi gas karbon dioksida telah mencapai 400 ppm pada tahun 2015 dan diperkirakan akan mencapai 1000 ppm pada tahun 2050, sehingga gas CO₂ di udara telah melampaui batas aman untuk kesehatan manusia dan lingkungan (Damen dkk., 2006 ; Ehleringer dkk., 2005). Konsentrasi gas CO₂ yang melampaui batas aman akan menyebabkan gangguan pernafasan hingga kematian bagi manusia, serta dapat menurunkan pH tanah dan air di sistem lingkungan menjadi asam. Oleh karena itu, jumlah gas karbon dioksida yang lepas menuju atmosfer harus segera dikurangi untuk menurunkan dampak pemanasan global maupun dampak kesehatan bagi manusia dan lingkungan.

Saat ini, negara-negara maju di Eropa sedang mengembangkan metode untuk menangkap gas karbon dioksida menggunakan teknologi penangkap dan penyimpan CO₂ atau disebut dengan CCS (*CO₂ Capture and Storage*) (European Commission, 2007). Teknologi CCS menggunakan prinsip pemisahan gas CO₂ dari udara, kemudian menyerap gas CO₂ dan menyimpannya agar tidak lepas menuju atmosfer (Figueroa dkk., 2008 dan Yang dkk., 2008). Gas karbon dioksida yang telah tersimpan dalam teknologi CCS tersebut dapat dimanfaatkan kembali secara

komersial dalam bentuk tabung gas CO₂ atau dikembangkan menjadi sumber energi alternatif seperti dalam penelitian Hamelers dkk. (2013). Dengan demikian, masalah emisi gas karbon dioksida dapat diatasi secara efisien.

Metode pemisahan CO₂ yang sering digunakan adalah absorpsi kimia karena dapat menghasilkan kemurnian CO₂ hingga 99%. Tetapi, prosesnya membutuhkan adsorben berupa pelarut kimia dalam jumlah sangat besar dan waktu pemisahan yang sangat lama, sehingga juga membutuhkan energi sangat tinggi untuk regenerasi adsorben (Li dkk., 2011 ; Smith dkk., 2013 ; Yu dkk., 2012). Metode alternatif lain yang saat ini sedang dikembangkan untuk pemisahan CO₂ dalam teknologi CCS adalah adsorpsi fisika material berpori. Prosesnya berjalan reversibel (Li dkk., 2013 dan Siporin dkk., 2003), membutuhkan energi relatif rendah (Zhang dkk., 2014) dan membutuhkan waktu relatif cepat untuk menyerap CO₂ dengan kemurnian mencapai 95% (Smith dkk., 2013). Oleh karena itu, penelitian ini menggunakan adsorpsi secara fisika (fisisorpsi) untuk menangkap CO₂ menggunakan material berpori.

Material yang menarik perhatian banyak peneliti untuk adsorpsi CO₂ adalah zeolit (Akhtar dkk., 2012 ; Cheung dkk., 2013 ; Shao dkk., 2009 ; Walton dkk., 2006). Beberapa penelitian menyebutkan bahwa zeolit memiliki kapasitas adsorpsi relatif besar pada kondisi 25°C dan tekanan relatif rendah (Akhtar dkk., 2012 ; Akhtar dan Bergström, 2011). Zeolit terdiri dari kristal aluminosilikat yang membentuk struktur pori mirip sangkar. Kerangka zeolit memiliki ukuran pori bervariasi antara 0,5 nm-1,2 nm sesuai dengan unit dasar penyusunnya, sedangkan CO₂ memiliki diameter kinetik sebesar 0,33 nm, sehingga ukuran pori pada zeolit sesuai untuk molekul CO₂. Prinsip dasar adsorpsi CO₂ pada zeolit adalah interaksi antara momen kuadropol CO₂ dan sisi kation dalam kerangka zeolit. Karbon dioksida akan berinteraksi secara kuat dengan sisi kation, kemudian akan teradsorpsi ke dalam pori zeolit (Deng dkk., 2012 ; Khelifa dkk., 2004 ; Walton dkk., 2006 ; Zhao dkk., 2007).

Jenis zeolit yang pernah digunakan untuk adsorpsi karbon dioksida adalah zeolit A, ZSM-5, zeolit-X atau Y (FAU), zeolit beta dan sodalit (Ahmad dkk., 2013 ; Akhtar dkk., 2012 ; Deng dkk., 2012 ; Pham dkk., 2014). Di antara jenis zeolit tersebut, zeolit-X memiliki kapasitas adsorpsi paling besar hingga mencapai 4-6

mmol/g (Akhtar dan Bergström, 2011 ; Walton dkk., 2006 ; Zhao dkk., 2007). Selain itu, sintesis zeolit-X juga tergolong mudah dengan cara mencampurkan larutan yang mengandung sumber silika dan alumina menggunakan metode hidrotermal dengan suhu relatif rendah antara 90°C - 100°C (Zhang dkk., 2013).

Hasil sintesis zeolit-X sering diubah menjadi pelet dengan menambah perekat karena ukuran partikel yang relatif kecil dan sulit dipisahkan, tetapi cara tersebut dapat menurunkan kemampuan zeolit saat adsorpsi CO₂ karena perekat yang digunakan akan menutup pori zeolit-X (Charkhi dkk., 2012). Okada^a (1997) menggunakan serat kaca (51% SiO₂- 49% Al₂O₃) sebagai material pendukung saat sintesis zeolit A, serta Devianti (2014) dan Venta (2015) menggunakan jenis serat kaca *glasswool* (55-70% SiO₂) sebagai material pendukung sintesis zeolit-X karena material serat tahan terhadap suhu tinggi dan berbentuk filamen panjang yang mudah dibentuk. Selain itu, kandungan fasa silika (SiO₂) dalam jenis serat kaca tersebut akan menyebabkan lapisan gel zeolit ternukleasi pada permukaan serat dan terkristalisasi, sehingga kristal zeolit dapat tumbuh dan menutupi permukaan serat. Penggunaan material pendukung serat dalam sintesis zeolit dinilai sangat menguntungkan karena tidak perlu menambahkan perekat serta sangat efisien saat digunakan untuk proses adsorpsi. Berdasarkan beberapa hal tersebut, zeolit tipe X dengan material pendukung serat digunakan untuk adsorpsi CO₂ dalam penelitian ini.

Salah satu faktor yang mempengaruhi sintesis zeolit berpendukung serat adalah suhu hidrotermal dan waktu hidrotermal. Berdasarkan penelitian sebelumnya (Devianti, 2014 ; Louis dkk., 2001 ; Okada^a dkk., 1997 ; Okada^b dkk., 2000), suhu dan waktu hidrotermal akan mempengaruhi pertumbuhan kristal pada permukaan material pendukung. Kristal zeolit-X dapat mengalami perubahan fasa menjadi sodalit (Okada^b dkk., 2000 dan Zhang dkk., 2013) pada suhu dan waktu hidrotermal tertentu, maka perlu dilakukan variasi pada suhu dan waktu hidrotermal saat sintesis zeolit-X berpendukung serat untuk menghindari perubahan fasa dari kristal zeolit-X menjadi sodalit.

Studi tentang termodinamika adsorpsi pada material zeolit-X telah banyak dilakukan sebelumnya. Zhang dkk. (2014) melaporkan bahwa pada suhu kamar (25°C) dan tekanan 1 bar, zeolit-X memiliki entalpi adsorpsi ($\Delta H^0 = -34,16$

Kj/mol), entropi ($\Delta S^0 = -40,64$ Kj/mol) dan energi bebas Gibbs ($\Delta G^0 = -22,00$ Kj/mol) lebih negatif dibandingkan zeolit lainnya, menunjukkan bahwa zeolit-X memiliki afinitas yang tinggi terhadap gas CO₂. Tetapi, pada suhu yang lebih tinggi (75°C) dan tekanan sama (1bar), energi bebas Gibbs menjadi lebih tidak negatif ($\Delta G^0 = -2,94$ Kj/mol) dibandingkan penelitian Zhang dkk. (2014). Hal itu menunjukkan bahwa proses adsorpsi berjalan lebih spontan pada suhu yang lebih rendah.

Selain aspek termodinamika adsorpsi, beberapa model kinetika adsorpsi seperti orde satu semu (Delavar dkk., 2012; Guererro dkk., 2010; Widiastuti dkk., 2011), orde dua semu (Guererro dkk., 2010) dan difusi intra partikel (Delavar dkk., 2012; Rashidi dkk., 2013; Widiastuti dkk., 2011) digunakan untuk mengetahui laju adsorpsi CO₂ pada zeolit-X berpendukung serat. Yi dkk. (2012) melaporkan bahwa laju adsorpsi pada zeolit-X berjalan cepat dalam satuan menit pada suhu 50°C/1 bar dan semakin meningkat pada suhu

Selain kemampuan adsorpsi, kemampuan regenerasi atau kemampuan desorpsi material adsorben di dalam teknologi CCS (*CO₂ Capture and Storage*) sangat dipertimbangkan agar dapat digunakan kembali, sehingga dapat meminimalisir pembuangan adsorben ke lingkungan. Gas CO₂ yang telah terdesorpsi dapat digunakan untuk keperluan lain seperti isi ulang tabung gas CO₂ komersial atau pemanfaatan gas CO₂ untuk penelitian konversi CO₂ menjadi bahan bakar metanol dan listrik (Barton dkk., 2010 ; Hamelers, 2013). Pada penelitian Silva dkk. (2012), laju desorpsi berjalan sangat cepat dalam satuan detik pada suhu 100°C/1 bar, sementara pada suhu yang lebih rendah (40°C/1 bar) laju desorpsi berjalan dalam hitungan menit.

Beberapa hasil penelitian tersebut menunjukkan bahwa proses adsorpsi-desorpsi pada material zeolit-X berjalan reversibel sesuai dengan prinsip fisisorpsi dan dipengaruhi oleh suhu. Laju adsorpsi dan desorpsi CO₂ pada zeolit-X yang relatif cepat dalam hitungan menit, serta pada suhu dan tekanan relatif rendah masih lebih efisien jika diterapkan di dalam teknologi CCS, dibandingkan metode absorpsi yang membutuhkan laju absorpsi dalam satuan jam.

Penelitian ini merupakan lanjutan dari Devianti (2014) dan Venta (2015) yang telah melakukan sintesis zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dengan

variasi pada suhu hidrotermal 90°C, 100°C, 110°C, 120°C, 130°C dan 150°C, serta waktu hidrotermal pada 10 jam, 15 jam, 24 jam, 36 jam dan 48 jam. Pada penelitian tersebut, kristal zeolit-X telah berubah menjadi sodalit pada suhu hidrotermal 130°C dan 150°C dengan waktu 15 jam. Pada suhu 90°C, 100°C, 110°C dan 120°C dengan waktu hidrotermal hingga 48 jam, fasa zeolit-X belum berubah menjadi sodalit, sehingga dalam rentang suhu dan waktu hidrotermal tersebut belum diketahui batasan agar kristal zeolit-X tidak berubah fasa menjadi sodalit. Berdasarkan hasil penelitian sebelumnya (Devianti, 2014; Okada^a dkk., 1997; Venta, 2015), maka di dalam penelitian ini akan digunakan rentang waktu 90°C, 100°C, 110°C dan 120°C, serta waktu hidrotermal pada 72 jam, 96 jam, 120 jam dan 144 jam.

Kapasitas adsorpsi CO₂ dari material zeolit-X berpendukung serat dari penelitian sebelumnya (Devianti, 2014) masih tergolong rendah dibandingkan zeolit-X tanpa serat yaitu 4,9% berat pada kondisi hidrotermal 110°C selama 24 jam dan pada kondisi adsorpsi 30°C (1bar). Ditambah lagi, studi tentang karakteristik adsorpsi pada zeolit-X berpendukung serat belum banyak dilakukan pada penelitian-penelitian sebelumnya (Devianti, 2014 ; Okada^a dkk., 1997 ; Okada^b dkk., 2000). Tetapi, pada penelitian Venta (2015), kapasitas adsorpsi CO₂ pada material zeolit-X berpendukung serat mencapai 10% berat pada kondisi hidrotermal 100°C selama 48 jam pada kondisi adsorpsi 30°C (1bar).

Hasil penelitian Venta (2015) tersebut menunjukkan bahwa material zeolit-X berpendukung serat berpotensi menjadi material penangkap CO₂ dengan kapasitas adsorpsi yang tinggi pada kondisi suhu dan waktu hidrotermal tertentu. Oleh karena itu, pada penelitian ini dilakukan variasi terhadap suhu dan waktu hidrotermal seperti yang telah disebutkan sebelumnya. Studi mengenai adsorpsi-desorpsi, aspek termodinamika dan model kinetika adsorpsi dengan variasi suhu juga akan dipelajari untuk mengetahui karakteristik adsorpsi CO₂ pada zeolit-X berpendukung serat.

1.2 Permasalahan

Pada penelitian ini dilakukan sintesis zeolit-X berpendukung serat untuk mempelajari karakteristik adsorpsi CO₂ pada material tersebut. Permasalahan yang dihadapi dalam penelitian ini adalah :

1. Pengaruh suhu dan waktu hidrotermal terhadap pertumbuhan fasa zeolit-X pada permukaan serat *glasswool* terkait struktur kristal, morfologi kristal dan karakteristik pori.
2. Pengaruh variasi suhu 30°C, 40°C dan 50°C pada tekanan 1 bar terhadap kapasitas adsorpsi-desorpsi CO₂ pada zeolit-X berpendukung serat *glasswool* hasil optimasi suhu dan waktu hidrotermal.
3. Model kinetika adsorpsi dan studi termodinamika adsorpsi CO₂ pada zeolit-X berpendukung serat *glasswool*.

1.3 Tujuan Penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk :

1. Mengetahui pengaruh suhu dan waktu hidrotermal terhadap pertumbuhan fasa zeolit-X pada permukaan serat *glasswool*.
2. Menentukan kapasitas adsorpsi-desorpsi CO₂ pada zeolit-X berpendukung serat *glasswool* hasil optimasi suhu dan waktu hidrotermal, dengan variasi suhu 30°C, 40°C dan 50°C pada tekanan 1 bar.
3. Menentukan model kinetika adsorpsi dan studi termodinamika adsorpsi CO₂ pada zeolit-X berpendukung serat *glasswool*.

1.4 Manfaat Penelitian

Hasil dalam penelitian ini diharapkan dapat memberikan pengetahuan dan kontribusi terhadap perkembangan penelitian tentang adsorben yang digunakan dalam teknologi penangkap dan penyimpan CO₂. Gas karbon dioksida tersebut diharapkan dapat dimanfaatkan kembali secara komersial untuk kepentingan lainnya atau dikembangkan menjadi alternatif energi baru seperti yang telah dijelaskan dalam latar belakang.

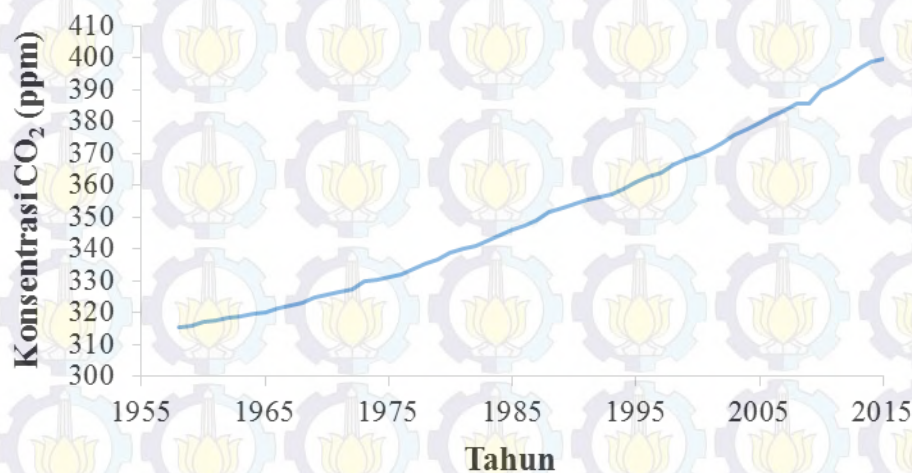
BAB 2

KAJIAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI

2.1 Emisi Gas CO₂

Peningkatan populasi penduduk serta pertumbuhan industri yang pesat pada abad ke 21 telah menyebabkan ledakan konsumsi energi di dunia. Hampir 85% konsumsi energi yang dibutuhkan negara-negara di dunia berasal dari bahan bakar fosil (Figueroa dkk., 2008 ; Li dkk., 2011 ; Yang dkk., 2008). Hasil pembakaran bahan bakar fosil tersebut akan menghasilkan gas sisa hasil pembakaran ke udara berupa gas karbon dioksida (CO₂) atau biasa disebut dengan emisi gas CO₂.

Saat ini telah terjadi peningkatan konsentrasi gas CO₂ dalam udara dari tahun ke tahun (Gambar 2.1). Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan dalam sebuah Observatorium Mauna Loa di Hawaii (Keeling dkk., 2001 dalam Ehleringer dkk., 2005), konsentrasi gas karbon dioksida yang terdapat dalam udara selama kurun waktu 50 tahun terakhir telah mencapai 400 ppm. Grafik pada Gambar 2.1 menunjukkan bahwa konsentrasi gas karbon dioksida mengalami peningkatan setiap tahun dengan rata-rata sebesar 0,4% (Keeling dkk., 2001).



Gambar 2.1 Konsentrasi gas karbon dioksida dari tahun 1958 hingga tahun 2015 dalam penelitian di Observatorium Mauna Loa, Hawaii (Ehleringer dkk., 2005; data diperoleh dari Keeling dkk., 2001).

Peningkatan konsentrasi gas karbon dioksida yang terjadi setiap tahun telah melampaui batas kemampuan tumbuhan dan laut untuk menyerapnya, sehingga gas

CO₂ yang tidak terserap akan terperangkap dalam lingkup atmosfer bumi. Fenomena tersebut menyebabkan pemanasan global yang ditandai dengan kenaikan suhu bumi hingga 1,9°C (Li dkk., 2013 dan Yang dkk., 2008), pergeseran iklim dan naiknya permukaan laut hingga 38 m (Figueroa dkk., 2008 ; Li dkk., 2011 ; Yang dkk., 2008). Selain itu, konsentrasi gas CO₂ di udara saat ini telah melebihi ambang batas yang diizinkan, yaitu 350 ppm, sehingga mulai mengakibatkan dampak buruk bagi kesehatan manusia dan lingkungan. Gas CO₂ yang terhirup ke dalam sistem pernafasan manusia dalam konsentrasi tinggi akan menyebabkan gangguan pernafasan bahkan kematian, sedangkan dampak gas CO₂ bagi lingkungan adalah menyebabkan tanah dan air laut berubah menjadi asam (Damen dkk., 2006).

Cara yang dapat digunakan untuk mengatasi bahaya emisi gas CO₂ adalah menggunakan teknologi penangkap dan penyimpanan gas karbon dioksida (*CO₂ Capture and Storage*). Prinsip utama dari teknologi penangkap dan penyimpanan gas karbon dioksida adalah menangkap CO₂ dari udara, kemudian menyimpannya agar tidak lepas ke atmosfer (Anderson and Newel, 2003 ; Li dkk., 2013 ; Yu dkk., 2012). Salah satu tahap yang paling penting di dalam sistem teknologi penangkap dan penyimpanan gas karbon dioksida adalah pemisahan gas CO₂ dari udara (Figueroa dkk., 2008 dan Yang dkk., 2008).

Metode pemisahan karbon dioksida yang paling sering digunakan di dalam teknologi penangkap dan penyimpan CO₂ dibedakan menjadi empat macam. Keempat metode tersebut adalah absorpsi di dalam pelarut kimia (Miller, 2011 dan Yu dkk., 2012), kriogenik (Tuinier dkk., 2011 dan Xu dkk., 2012), teknologi membran (Miller, 2011 ; Snider dan Verweij, 2014) dan adsorpsi material berpori (Cheung dkk., 2013 ; de Souza dkk., 2013 ; Zukal dkk., 2011).

Masing-masing metode pemisahan CO₂ memiliki kelebihan dan kekurangan. Perbandingan keempat metode pemisahan karbon dioksida dapat dilihat dalam Tabel 2.1. Metode absorpsi memerlukan energi tinggi karena interaksi antara adsorben (pelarut kimia) dan adsorbat (gas CO₂) berupa ikatan kimia, sehingga sangat sulit dipisahkan saat regenerasi adsorben, sedangkan pada metode kriogenik memerlukan energi tinggi untuk mengubah CO_{2(g)} menjadi CO_{2(l)}.

Tabel 2.1 Perbandingan metode pemisahan karbon dioksida (*Keterangan : energi yang dibutuhkan saat proses pemisahan CO₂ dari udara).

Metode	Kelebihan	Kekurangan	Energi* (MJ/Kg CO ₂)	Pustaka
Absorpsi	Kemurnian CO ₂ yang dipisahkan dari udara sangat tinggi (99%)	Prosesnya menggunakan pelarut kimia, sehingga membutuhkan air dalam jumlah banyak	0,5 - 4,5	(Li dkk., 2011 ; Pirngruber dkk., 2013 ; Smith dkk., 2013)
		Waktu yang digunakan selama proses pemisahan CO ₂ sangat lama (jam)		
Kriogenik	Kemurnian CO ₂ yang dipisahkan dari udara sangat tinggi (99%)	Fasa gas CO ₂ harus diubah menjadi cairan dengan suhu sangat rendah	0,4	(Li dkk., 2011 ; Miller, 2011 ; Smith dkk., 2013 ; Xu dkk., 2012)
		Waktu yang digunakan selama proses pemisahan CO ₂ sangat lama (jam)		
Membran	Waktu yang digunakan selama proses pemisahan CO ₂ relatif cepat (menit)	Kemurnian CO ₂ yang dipisahkan dari udara sangat rendah (< 40%)	0,5 - 16,56	(Kazama dan Haraya, 2013 ; Li dkk., 2011 ; Smith dkk., 2013)
		Selektivitas terhadap gas CO ₂ masih tergolong sangat rendah jika digunakan secara komersial		
Adsorpsi material berpori	Kemurnian CO ₂ yang dipisahkan dari udara relatif tinggi (95%)	Saat adsorpsi terjadi secara kimia, membutuhkan energi tinggi untuk melepaskan kembali gas CO ₂ (desorpsi)	0,1 - 1	(Li dkk., 2011 ; Pham dkk., 2014 ; Pirngruber dkk., 2013 ; Smith dkk., 2013)
	Waktu yang digunakan selama proses pemisahan CO ₂ relatif cepat (menit)			
	Selektivitas terhadap gas CO ₂ sangat tinggi			

Pada metode membran, kemurnian gas CO₂ yang dipisahkan dari udara masih sangat rendah dibandingkan metode lainnya (Figuerola dkk., 2008 ; Li dkk., 2011 ; Miller, 2011). Selanjutnya adalah metode adsorpsi menggunakan material berpori seperti silika berpori dan zeolit. Metode ini hanya membutuhkan energi relatif rendah saat proses menangkap CO₂ dan memiliki selektivitas tinggi terhadap gas CO₂ (Li dkk., 2011 dan Pham dkk., 2014). Oleh karena itu, dalam penelitian ini digunakan metode adsorpsi untuk menyerap gas CO₂.

2.2 Material Berpori untuk Adsorpsi CO₂

Material berpori yang saat ini dikembangkan untuk adsorpsi karbon dioksida adalah silika mesopori (Chang dkk., 2009 ; Kim dkk., 2008 ; Zelenák dkk., 2008), zeolit (Akhtar dkk., 2012 ; Cheung dkk., 2013 ; Snider and Verweij, 2014), karbon aktif (Hao dkk., 2010 dan Lee dkk., 2002), MOF (*metal organic framework*) (Li dkk., 2011 ; Millward dan Yaghi, 2005) dan COF (*covalent organic framework*) (Furukawa dan Yaghi, 2009 ; Uribe-Romo dkk., 2009). Tabel 2.2 menunjukkan beberapa hasil penelitian adsorpsi karbon dioksida menggunakan material berpori.

Tabel 2.2 Hasil penelitian adsorpsi karbon dioksida menggunakan material berpori;

Material berpori	Kondisi adsorpsi		Kapasitas adsorpsi CO ₂ (mmol/g)	Pustaka
	Suhu (°C)	Tekanan (bar)		
Silika mesopori	25	1	1 - 2	(Kim dkk., 2008 dan Zelenák dkk., 2008)
Zeolit	25	1	1 - 6	(Akhtar dkk., 2012 ; Walton dkk., 2006 ; Yu dkk., 2013)
Karbon aktif	25	1	1 - 3	(Hao dkk., 2010 ; Lee dkk., 2012)
MOF	25	32	33,50	(Millward dan Yaghi, 2005)
COF	25	55	27,00	(Furukawa dan Yaghi, 2009)

Material zeolit, MOF dan COF pada Tabel 2.2 memiliki kapasitas adsorpsi karbon dioksida relatif lebih besar jika dibandingkan dengan silika mesopori dan karbon aktif. Meskipun MOF dan COF memiliki kapasitas adsorpsi CO₂ paling

besar, tetapi saat proses adsorpsi memerlukan tekanan sangat tinggi bila dibandingkan dengan zeolit. Selain itu, jenis adsorpsi yang terjadi pada material MOF dan COF adalah kemisorpsi (Furukawa dan Yaghi, 2009), sehingga membutuhkan tekanan yang relatif tinggi untuk proses adsorpsi CO₂ pada suhu relatif rendah (25°C).

Pada material zeolit, proses adsorpsi CO₂ hanya membutuhkan suhu dan tekanan relatif rendah (25°C, 1 bar) dibandingkan dengan material MOF atau COF. Kapasitas adsorpsi yang dimiliki oleh material zeolit juga relatif besar hingga mencapai 6 mmol/g, sehingga material zeolit lebih banyak digunakan sebagai adsorben dalam proses adsorpsi karbon dioksida.

Tabel 2.3 Kapasitas adsorpsi CO₂ pada beberapa jenis zeolit ; a = luas permukaan (m²/g) ; b = volume total pori (cm³/g) ; c = kapasitas adsorpsi CO₂ (mmol/g) ; T = suhu (°C) ; p = tekanan (bar)

Jenis Zeolit		a (m ² /g)	b (cm ³ /g)	c (mmol/g)	Kondisi adsorpsi		Pustaka
					T (°C)	p (bar)	
Zeolit alam	Zeolit-NaA	528	0,33	1,25	25	1	(Siriwardane dkk., 2001)
	Zeolit-4A	22,8	0,03	0,80	25	1	
Zeolit-A	Zeolit-CaA	397	0,15	1,19	50	0,6	(Yi dkk., 2012)
	Zeolit-5A	384	0,32	1,2	60	0,6	(Deng dkk., 2012)
Zeolit-β	Zeolit-β	574	0,23	1,76	30	1	(Xu dkk., 2009)
	Zeolit-β-MEA	209	0,19	1,39	30	1	
	Zeolit-K-β	446	0,41	2,73	25	1	(Yang dkk., 2010)
	Zeolit-Na-β-Melamin	263	0,14	3,70	25	1	(Ahmad dkk., 2013)
Zeolit-X	Zeolit-NaX	527	0,36	4,98	25	1	(Walton dkk., 2006)
	Zeolit-LiX	659	0,30	4,50	25	1	
	Zeolit- 13X monolit	723	0,36	6,62	0	1	(Akhtar dan Bergström, 2011)
	Zeolit- K-13X	482	0,24	3,41	0	1	(Zhao dkk., 2007)
Zeolit-Y	Zeolit- NaY	723	0,35	4,90	30	1	(Shao dkk., 2009)
	Zeolit- NaY-TEPA	402	0,20	2,83	30	1	(Lee dkk., 2013)
Zeolit-MFI	ZSM-5	312	0,14	2,50	30	1	(Pham dkk., 2014)
	H-ZSM-5	307	0,13	2,59	22	1	(Harlick dan Tezel, 2004)
Zeolit lain	Zeolit- BEA	395	0,21	2,40	30	1	(Pham dkk., 2014)
	Zeolit- CHA	572	0,27	3,50	30	1	
	Zeolit- FER	282	0,13	2,50	30	1	
	Zeolit- STT	411	0,19	3,25	30	1	

Tabel 2.3 menunjukkan jenis zeolit yang pernah digunakan sebagai adsorben dalam proses adsorpsi gas karbon dioksida. Secara umum, material zeolit memiliki kapasitas adsorpsi gas CO₂ antara 1 mmol/g hingga 6 mmol/g pada suhu ruang antara 22°C-30°C dan tekanan relatif rendah sebesar 1 bar. Di antara jenis zeolit pada Tabel 2.3, zeolit-X memiliki kemampuan untuk mengadsorpsi gas karbon dioksida paling tinggi antara 4-6 mmol/g. Selain itu, selektivitas zeolit-X terhadap gas CO₂ sangat tinggi (Deng dkk., 2012 ; Hedin dkk., 2013 ; Shao dkk., 2009 ; Zhang dkk., 2014), sehingga proses adsorpsi gas CO₂ ke dalam pori zeolit dapat berlangsung cepat dengan kemurnian tinggi. Oleh karena itu, banyak penelitian untuk meningkatkan kapasitas adsorpsi CO₂ yang menggunakan zeolit-X sebagai adsorben. Pada penelitian ini juga digunakan material zeolit-X sebagai adsorben dalam proses adsorpsi CO₂.

2.3 Zeolit-X

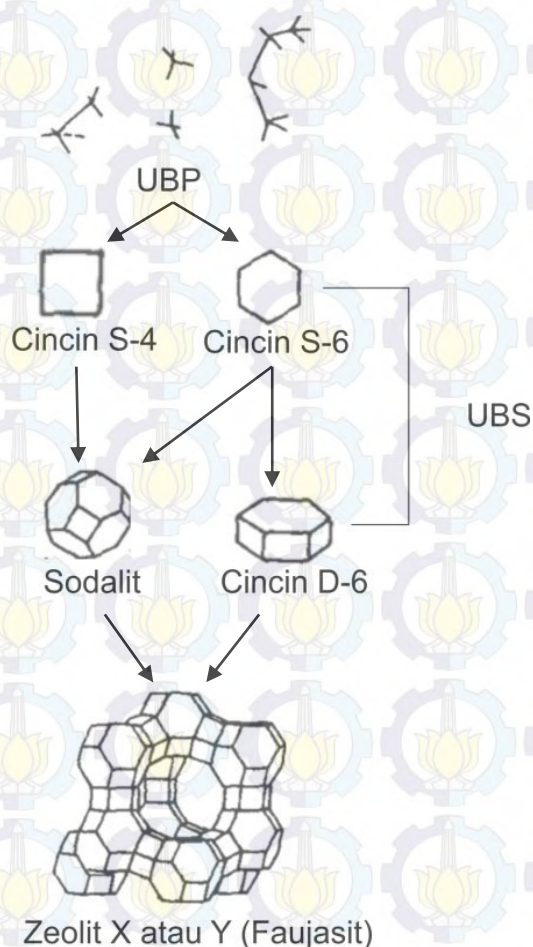
2.3.1 Struktur Zeolit-X

Zeolit merupakan material yang terdiri dari kristal aluminosilikat yang membentuk struktur pori mirip sangkar (cage like) atau bingkai (framework) dengan ukuran molekular 0,5 nm - 1,2 nm. Rumus empiris zeolit secara umum adalah $M_2/nO[(AlO_2)_x(SiO_2)_y] \cdot mH_2O$. Sedangkan untuk zeolit-X, memiliki rumus umum $[(Ca^{2+}, Mg^{2+}, Na^+)_{29} (H_2O)_{240}] [Al_{58}Si_{134}O_{384}]$ (Baerlocher dkk., 2007 ; Chester dan Derouane, 2009). Zeolit-X termasuk ke dalam golongan silika menengah (*intermediate silica*) dengan rasio Si/Al yaitu $2 < Si/Al < 5$. Zeolit-X memiliki struktur mirip zeolit-Y tetapi memiliki perbedaan rasio Si/Al, yaitu $Si/Al \leq 1,5$ untuk zeolit-X dan $2,2 < Si/Al < 3$ untuk zeolit-Y (Byrappa dan Yoshimura, 2013 ; Eulenberger dkk., 1967).

Satuan dasar penyusun zeolit pada umumnya terdiri dari tetrahedral (SiO₄)⁴⁻ dan (AlO₄)⁵⁻ yang membentuk kerangka jaringan tiga dimensi dengan atom oksigen sebagai penghubung (Chester dan Derouane, 2009). Struktur dasar tetrahedral Si dan Al disebut sebagai Unit Bagian Primer (UBP) yang kemudian akan membentuk kerangka Unit Bangun Sekunder (UBS) yaitu cincin tunggal (S-4, S-5, S-6, S-8, S-10, dan S-12) atau cincin ganda (D-4, D-6 dan D-8) (Byrappa dan Yoshimura, 2013 ; Baerlocher dkk., 2007). Beberapa UBS yang terbentuk akan bergabung

menghasilkan berbagai struktur kristal zeolit seperti Zeolit A, ZSM-5, Zeolit-X atau Y (faujasit).

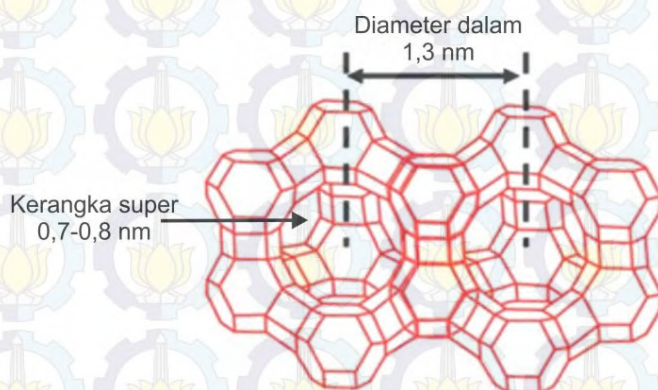
Gambar 2.2 menunjukkan urutan pembentukan struktur kristal pada zeolit-X dari struktur dasar UBP dan kerangka UBS. Struktur kerangka zeolit-X tersebut berasal dari UBS cincin tunggal S-4 atau S-6 yang kemudian membentuk kumpulan UBS berupa unit sodalit dan cincin ganda D-6. Setelah itu, kumpulan dari beberapa UBS tersebut akhirnya akan membentuk kerangka zeolit tipe faujasit.



Gambar 2.2 Pembentukan struktur kristal zeolit-X (Byrappa dan Yoshimura, 2013).

Kerangka (*framework*) zeolit-X merupakan susunan dari unit aluminosilikat kubus-oktahedral yang terdiri dari 24 atom (Si,Al) dan 36 atom oksigen membentuk unit sodalit. Tiap unit sodalit tersambung oleh enam jembatan atom oksigen pada cincin (Si, Al)O (cincin D-6) terhadap empat unit sodalit lainnya, sehingga 12 atom oksigen pada cincin membentuk prisma heksagonal terdistorsi, dapat dilihat pada

Gambar 2.3 (Eulenberger dkk., 1967 dan Hutson dkk., 2000). Di dalam unit sel zeolit tersebut, terdapat kelompok silika (SiO_2) yang memiliki muatan netral dan kelompok alumina (AlO_2^-) yang memiliki muatan negatif yang kemudian dapat diseimbangkan dengan muatan penyeimbang (Hutson dkk., 2000) berupa kation di luar kerangka seperti Na^+ (Bezerra dkk., 2014 ; Hedin dkk., 2013 ; Li^b dkk., 2013), Li^+ (Pillai dkk., 2012 dan Walton dkk., 2006), Cs^+ (Díaz dkk., 2008) dan lainnya.



Gambar 2.3 Kerangka zeolit-X (Lee dkk., 2007).

Kemampuan struktur kristal zeolit-X untuk membentuk kerangka zeolit dengan ukuran pori tertentu dapat dimanfaatkan sebagai material penangkap CO_2 . Kerangka zeolit-X memiliki pori mirip sangkar atau bingkai yang memiliki ukuran diameter dalam sebesar 1,3 nm dan diameter kerangka super (*supercage*) antara 0,7-0,8 nm (Eulenberger dkk., 1967 dan Lee dkk., 2007), sementara molekul gas CO_2 memiliki diameter kinetik sebesar 0,33 nm (Deng dkk., 2012 dan D'Alessandro dkk., 2010), sehingga gas CO_2 dapat teradsorpsi ke dalam pori zeolit.

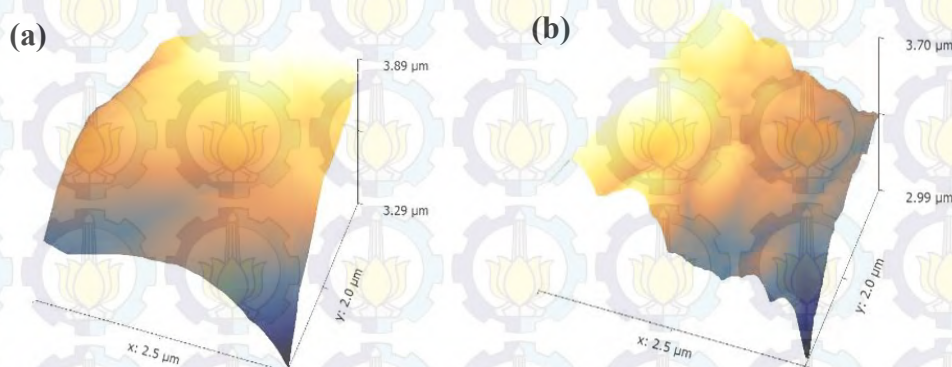
2.3.2 Sintesis Zeolit-X Berpendukung Serat

Prinsip dasar sintesis zeolit-X meliputi tahap pembentukan gel, proses hidrotermal dan kristalisasi zeolit. Proses pembentukan gel terjadi saat pencampuran larutan sumber alumina dan sumber silika dengan adanya alkali hidroksida atau basa organik (Georgiev dkk., 2009 dan Yani dkk., 2013).

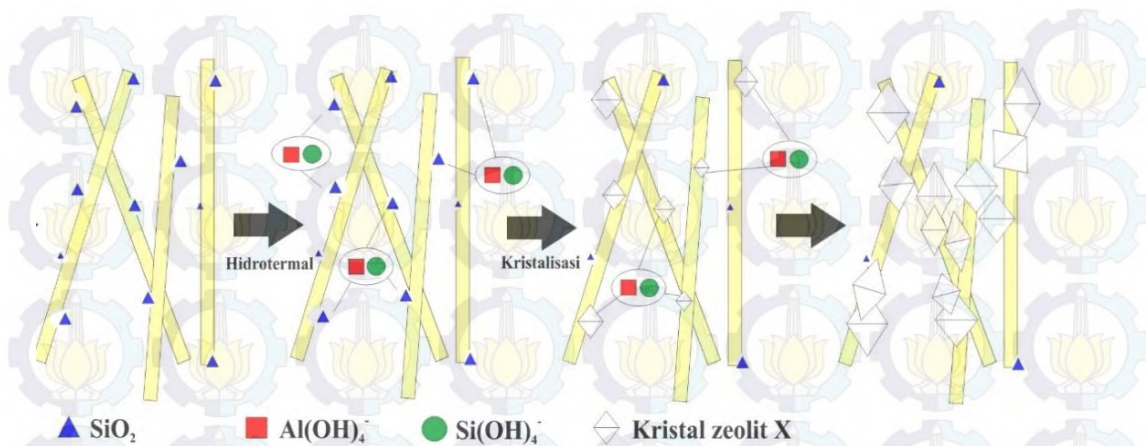
Hasil sintesis zeolit-X memiliki bentuk fisik serbuk dengan ukuran partikel yang relatif kecil. serta sulit dipisahkan saat akan digunakan. Oleh karena itu, bentuk zeolit sering diubah menjadi pellet dan granular (Charkhi dkk., 2012) dengan menambah perekat. Tetapi penambahan perekat dapat menurunkan

kemampuan zeolit-X sebagai adsorben gas karbon dioksida. Material perekat yang digunakan dapat menutupi pori pada permukaan zeolit, sehingga metode tersebut masih dianggap kurang efisien untuk pengukuran kapasitas adsorpsi gas karbon dioksida pada zeolit-X.

Permasalahan tersebut dapat diatasi dengan menambahkan material pendukung saat sintesis zeolit-X. Material pendukung dalam sintesis zeolit yang sering digunakan adalah serat kaca (Okada^a dkk., 1997 ; Okada^b dkk., 2000 ; Larlus dkk., 2002 ; Louis dkk., 2001). Material pendukung berupa serat memiliki banyak kelebihan ketika digunakan untuk sintesis zeolit yaitu bentuknya berupa filamen yang halus, panjang, mudah dibentuk, serta tahan terhadap suhu tinggi hingga 200°C (Valtchev dkk., 1996 dan Larlus dkk., 2002). Sebelum digunakan, serat kaca diaktivasi terlebih dahulu menggunakan larutan basa kuat (Okada^a dkk., 1997 ; Okada^b dkk., 2000 ; Rella, 2013). Hal tersebut berfungsi untuk merusak struktur permukaan serat dan mengeluarkan fasa silika dalam serat yang berguna untuk membantu zeolit dapat tumbuh pada permukaan serat (Yamazaki dan Tsutsumi, 1995 dan Louis dkk., 2001). Gambar 2.4 menunjukkan gambar AFM permukaan serat *glasswool* sebelum dan sesudah proses aktivasi pada penelitian sebelumnya (Wardani, 2014). Daerah berwarna terang-gelap menunjukkan tinggi-rendahnya permukaan serat *glasswool* atau disebut dengan topografi permukaan. Serat *glasswool* sesudah aktivasi memiliki topografi permukaan lebih kasar yang menunjukkan bahwa proses aktivasi telah merusak struktur permukaan serat untuk mengeluarkan fasa silika. Selanjutnya, proses kristalisasi zeolit-X di atas permukaan serat *glasswool* terjadi sesuai dengan ilustrasi pada Gambar 2.5.



Gambar 2.4 Gambar AFM dari serat *glasswool* : (a) sebelum aktivasi ; (b) sesudah aktivasi(Wardani, 2014).



Gambar 2.5 Proses kristalisasi zeolit pada serat yang telah teraktivasi (berdasarkan Yamazaki dan Tsutsumi, 1995).

Kondisi sintesis zeolit akan mempengaruhi pertumbuhan kristal zeolit-X pada permukaan material pendukung. Beberapa faktor yang mempengaruhi sintesis zeolit berpendukung serat adalah suhu saat hidrotermal (Okada^a dkk., 1997 ; Yamazaki dan Tsutsumi, 1995 ; Louis dkk., 2001) dan waktu hidrotermal (Okada^a dkk., 1997 dan Okada^b dkk., 2000). Beberapa penelitian sebelumnya telah memperlihatkan pengaruh suhu dan waktu hidrotermal terhadap fasa zeolit yang terbentuk pada serat (Tabel 2.4).

Tabel 2.4 Suhu dan waktu hidrotermal untuk sintesis zeolit berpendukung serat.

Material	Suhu hidrotermal	Waktu hidrotermal	Fasa zeolit	Pustaka
Zeolit-A/serat kaca	110°C	20 jam	Zeolit-A	(Okada ^a dkk., 1997)
	110°C	72 jam	Zeolit-A + Sodalit	
Zeolit-X/serat kaca SiO ₂ -Al ₂ O ₃	110°C	18 jam	Zeolit-X	(Okada ^b dkk., 2000)
Zeolit-X/serat <i>glass wool</i>	110°C	25 jam	Zeolit-X	(Devianti, 2014)
	150°C	15 jam	Sodalit	
Zeolit-X/serat <i>glass wool</i>	100°C	48 jam	Zeolit-X	(Venta, 2015)
	130°C	24 jam	Sodalit	

Berdasarkan tabel 2.4, sintesis zeolit berpendukung serat dapat dilakukan pada suhu antara 100°C - 110°C, serta pada rentang waktu hidrotermal antara 18 jam - 48 jam. Hal tersebut menunjukkan bahwa kristalisasi zeolit pada pendukung serat dapat dilakukan pada suhu dan waktu hidrotermal tertentu untuk mendapatkan kristalinitas yang paling optimal.

Selanjutnya, hasil kristalinitas relatif pada berbagai variasi suhu dan waktu hidrotermal dianalisis menggunakan ANOVA dua arah tanpa pengulangan untuk menentukan pengaruh yang paling signifikan terhadap kristalinitas dari dua faktor yang dijalankan. Analisis varians ini digunakan sebagai metode statistik untuk menginterpretasikan data-data hasil percobaan. Teknik perhitungan dalam ANOVA, memungkinkan secara kuantitatif mengestimasi kontribusi dari setiap faktor (Ellison dkk., 2009 ; Roy, 2001).

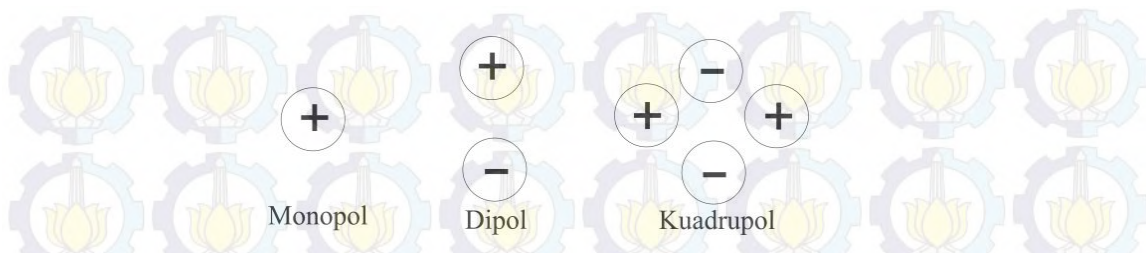
Tabel 2.5 Tabel ANOVA dua arah tanpa pengulangan (Roy, 2001)

Parameter	df	SS	MS	F _{hitung}
Faktor A	a-1	$SSA = \sum_{i=1}^a n_i (\bar{y}_i - \bar{y})^2$	$\frac{SSA}{(a-1)}$	$\frac{MSA}{MSE}$
Faktor B	b-1	$SSB = \sum_{j=1}^b n_j (\bar{y}_j - \bar{y})^2$	$\frac{SSB}{(b-1)}$	$\frac{MSB}{MSE}$
Error	(a-1)(b-1)	$SSE = SST - SSA - SSB$	$\frac{SSE}{(a-1)(b-1)}$	
Total	N-1	$SST = \sum_{i=1}^a n_i \sum_{j=1}^b n_j (\bar{y}_{ij} - \bar{y})^2$		

2.4 Adsorpsi CO₂ Pada Zeolit-X

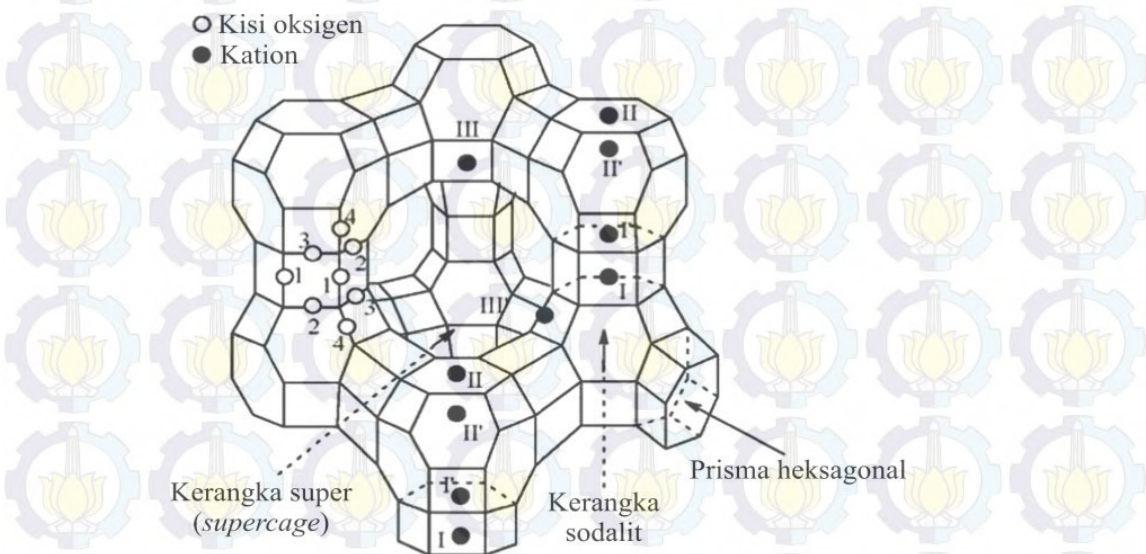
2.4.1 Prinsip dan Mekanisme Adsorpsi CO₂

Karbon dioksida merupakan gas yang bersifat asam lemah (Walton dkk., 2006 dan Yu dkk., 2013), berdiameter kinetik sebesar 0,33 nm (Deng dkk., 2012), tidak memiliki momen dipol, tetapi memiliki momen kuadrupol yang relatif tinggi (Deng dkk., 2012 ; Yi dkk., 2012 ; Zhang dkk., 2014). Dalam molekul CO₂, terdapat dua ikatan dipol yang berlawanan, serta jumlah vektor masing-masing ikatan dipol antara C⁺—O⁻ adalah nol. Sehingga, molekul CO₂ yang linier akan memiliki momen kuadrupol dengan struktur ⁻O—⁺C⁺—O⁻ (Buckingham and Disch, 1963 ; Cohen, 1971 ; Williams, 1993). Ilustrasi interaksi momen kuadrupol dalam molekul CO₂ beserta perbandingannya dengan jenis interaksi lain dapat dilihat pada Gambar 2.5.



Gambar 2.6 Model sistem interaksi antar kutub-kutub bermuatan berdasarkan (Cohen, 1971) dan (Williams, 1993).

Prinsip interaksi antara molekul gas karbon dioksida (CO_2) dengan zeolit tipe X berdasarkan teori potensial adsorbat-adsorben (Deng dkk., 2012) adalah gaya interaksi antara gradien medan elektrik dan momen kuadrupol (Φ_{FQ}) (Deng dkk., 2012 dan Shao dkk., 2009). Interaksi elektrostatik akan muncul antara momen kuadrupol yang dimiliki oleh CO_2 dan medan elektrik dari zeolit-X yang bergantung pada sifat kation (Shao dkk., 2009 dan Zhang dkk., 2014) serta lokasinya pada kerangka zeolit-X (Shao dkk., 2009 ; Walton dkk., 2006 ; Yang dkk., 2014).



Gambar 2.7 Sisi kation dalam kerangka zeolit-X (Yang dkk., 2014).

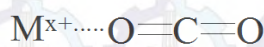
Molekul gas CO_2 dapat berinteraksi dengan permukaan zeolit-X melalui kisi atom oksigen dan kation dalam kerangka zeolit. Adanya momen kuadrupol pada CO_2 menyebabkan interaksi yang lebih kuat antara CO_2 dan kation pada zeolit-X. Sementara itu, interaksi antara molekul CO_2 dengan ion Al atau Si dapat diabaikan karena kedua ion ini terdapat pada sisi tengah satuan dasar tetrahedral yang tidak

bersentuhan langsung dengan molekul adsorbat tersebut (Shao dkk., 2009 ; Yi dkk., 2012 ; Zhang dkk., 2014).

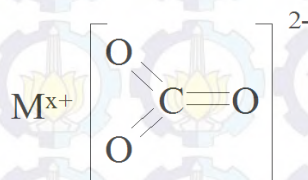
Kerangka tiga dimensional dari zeolit tipe X (Gambar 2.6) menunjukkan posisi-posisi yang dapat ditempati oleh kation. Sisi I dan I' terletak pada sisi muka prisma heksagonal di antara kerangka sodalit, sisi II dan II' terletak pada sisi muka heksagonal dan sisi III terletak pada dinding kerangka super (Walton dkk., 2006 dan Yang dkk., 2014). Zeolit-X memiliki semua sisi kation pada sisi I/I', II/II' dan III (Walton dkk., 2006 ; Yang dkk., 2014 ; Zhao dkk., 2007), sedangkan zeolit-Y hanya sisi I/I' dan II/II' (Walton dkk., 2006).

Kation yang terletak pada sisi I, I' dan II' secara umum akan berinteraksi lemah dengan molekul gas CO₂ yang teradsorpsi karena sisi tersebut tidak dapat dicapai oleh kebanyakan molekul adsorbat. Kation pada sisi II dan III akan berinteraksi secara kuat dengan momen kuadrupol CO₂ karena lebih mudah dicapai oleh molekul adsorbat (Khelifa dkk., 2004 ; Walton dkk., 2006 ; Yang dkk., 2014).

Secara umum, proses adsorpsi CO₂ ke dalam zeolit-X termasuk ke dalam adsorpsi fisika atau fisisorpsi (Akhtar Bergström, 2011 ; Kamiuto dkk., 2002 ; Walton dkk., 2006). Pada fisisorpsi, terjadi interaksi yang relatif lemah antar permukaan zeolit-X dan gas adsorben. Mekanisme adsorpsi yang terjadi merupakan interaksi antara momen kuadrupol molekul gas CO₂ dengan kation pada sisi II/III (Khelifa dkk., 2004 dan Zhao dkk., 2007) dalam kerangka zeolit-X serta kation pada sisi II dalam kerangka zeolit-Y (Walton dkk., 2006 dan Zhao dkk., 2007). Sehingga, gas CO₂ akan teradsorpsi pada sisi kation membentuk struktur pada Gambar 2.7 (a).



(a)



(b)

Gambar 2.8 Struktur CO₂ pada kerangka zeolit-X saat terjadi fisisorpsi (a) dan kemisorpsi (b) berdasarkan Hedin dkk. (2013) dan Jacobs dkk. (1973).

Proses adsorpsi secara kimia (kemisorpsi) pada zeolit-X juga dapat terjadi (Bezzera dkk., 2014 dan Li dkk., 2013), molekul CO₂ yang teradsorpsi akan mengalami rekonfigurasi dengan terbentuknya karbonat (CO₃²⁻) yang terikat secara kimia pada permukaan zeolit (Gambar 2.7 b). Ion karbonat akan terbentuk pada permukaan zeolit-X ketika terdapat residu air. Molekul CO₂ berikatan dengan ion oksigen dari molekul air yang terdisosiasi membentuk karbonat pada suhu tinggi (Hedin dkk., 2013 dan Jacobs dkk., 1973). Menurut penelitian sebelumnya (Jacobs dkk., 1973), pembentukan ion karbonat juga dapat terjadi tanpa adanya residu air, seperti pada zeolit-X dalam bentuk dehidrat. Oksigen dari kisi zeolit-X akan berikatan dengan molekul CO₂ dalam kondisi pemanasan suhu tinggi. Hal tersebut dapat dikarenakan atom oksigen dalam kisi zeolit-X memiliki densitas muatan yang mendekati ion oksigen yang terdisosiasi dalam molekul air.

2.4.2 Selektivitas Terhadap CO₂

Zeolit tipe X termasuk ke dalam jenis zeolit dengan rasio Si/Al kecil. Hal ini menyebabkan zeolit memiliki selektivitas tinggi terhadap gas CO₂ karena zeolit dengan rasio Si/Al kecil akan memiliki permukaan yang lebih basa, sedangkan gas CO₂ bersifat asam lemah (Khelifa dkk., 2004 ; Li dkk., 2013 ; Walton dkk., 2006). Selain itu, gas CO₂ memiliki momen kuadrupol sangat tinggi hingga mencapai tiga kali lipat dari SO₂, NO dan N₂, serta polarisabilitas relatif tinggi (Tabel 2.6) yang menyebabkan afinitasnya lebih kuat terhadap zeolit-X. Sehingga, zeolit tipe X akan berinteraksi secara kuat dengan momen kuadrupol CO₂ dibandingkan gas lainnya (Hedin dkk., 2013 ; Shao dkk., 2009 ; Zhang dkk., 2014).

Tabel 2.6 Data molekul gas adsorbat.

Gas	Momen kuadrupol (au)	Polarisabilitas	Pustaka
SO ₂	0,97	42,8	(Deng dkk., 2012 dan Shao dkk., 2009)
NO	1,78	17	
CO ₂	3,34	29,1	
N ₂	1,09	17,4	

Selektivitas zeolit-X yang sangat tinggi terhadap gas CO₂ dalam campuran gas menyebabkan kapasitas adsorpsi menjadi relatif besar. Berdasarkan

penelitian sebelumnya, kapasitas adsorpsi CO₂ pada material zeolit-X dapat mencapai 3-6 mmol/g pada kondisi suhu dan tekanan relatif rendah (Akhtar dan Bergström, 2011; Walton dkk., 2006).

2.5 Model Kinetika Adsorpsi

Model kinetika adsorpsi dapat digunakan untuk mengamati laju adsorpsi CO₂ ke dalam zeolit-X berpendukung serat. Beberapa model kinetika adsorpsi gas yang sering digunakan berdasarkan Tabel 2.7 adalah orde satu semu, orde dua semu dan model difusi intra-partikel (Delavar dkk., 2012; Guererro dkk., 2010; Widiastuti dkk., 2011). Ketiga model kinetika tersebut diuji untuk menentukan model kinetika adsorpsi yang sesuai untuk adsorpsi zeolit-X berpendukung serat.

Tabel 2.7 Model kinetika adsorpsi gas pada material berpori.

Material berpori	Model kinetika adsorpsi	Kondisi adsorpsi		Pustaka
		T (°C)	P (bar)	
Zeolit 13X	Orde satu semu	25	0,5	(Zhang dkk., 2010)
		35		
		45		
		55		
		25	3	
		35		
		45		
		55		
Zeolit 13X	Difusi mikropori	40	1	(Silva dkk., 2012)
		70		
		100		
MCM-41	- Orde satu semu - Orde dua semu	25	1	(Guererro dkk., 2010)
	40			
	55			
Karbon nanotube	- Orde satu semu - Difusi intra partikel	10	1	(Delavar dkk., 2012)
	25			
	45			

2.5.1 Orde Satu Semu

Model kinetika orde satu semu digunakan secara umum untuk menggambarkan laju adsorpsi yang ditentukan dengan persamaan 2.1.

$$\frac{dq_t}{dt} = k_f(q_e - q_t) \quad (2.1)$$

Dengan q_t (mmol/g) adalah jumlah adsorbat yang diserap pada waktu t (menit), q_e (mmol/g) adalah kapasitas adsorpsi pada saat kesetimbangan dan k_f (menit⁻¹) yaitu konstanta laju orde satu semu. Persamaan 2.1 dapat diintegrasikan dengan kondisi mula-mula $q_t = 0$ saat $t = 0$ dan $q_t = q_t$ saat $t = t$, sehingga didapatkan persamaan 2.5 (Delavar dkk., 2012; Guererro dkk., 2010; Widiastuti dkk., 2011) melalui penjabaran berikut ini :

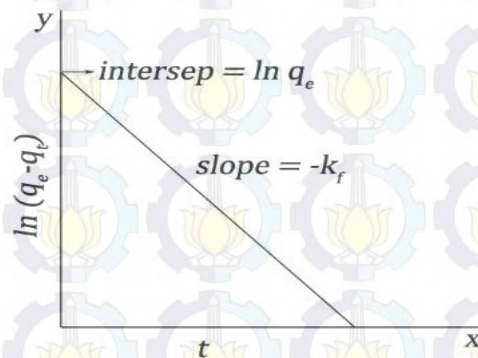
$$\int_0^{q_t} \frac{dq_t}{(q_e - q_t)} = \int_0^t k_f dt \quad (2.2)$$

$$-\ln(q_e - q_t)|_0^{q_t} = k_f t|_0^t \quad (2.3)$$

$$-\ln(q_e - q_t) + \ln(q_e - 0) = k_f(t - 0) \quad (2.4)$$

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_f t \quad (2.5)$$

Persamaan 2.5 digunakan untuk menggambarkan grafik model kinetika adsorpsi orde satu semu seperti Gambar 2.8. Plot dari $\ln(q_e - q_t)$ dan t akan memberikan *slope* yang menunjukkan harga konstanta laju orde satu semu (k_f).



Gambar 2.9 Grafik model kinetika orde satu semu (berdasarkan Delavar, 2012).

2.5.2 Orde Dua Semu

Model kinetika adsorpsi orde dua semu juga sering digunakan untuk menggambarkan laju adsorpsi gas (Guererro dkk., 2010). Persamaan 2.6 digunakan dalam perhitungan model kinetika adsorpsi orde dua semu.

$$\frac{dq_t}{dt} = k_s(q_e - q_t)^2 \quad (2.6)$$

Dimana k_s (g/mg menit) adalah konstanta laju orde dua semu, q_t (mg/g) adalah jumlah adsorbat yang diserap pada waktu t (menit), q_e (mg/g) adalah kapasitas adsorpsi kesetimbangan. Pada kondisi mula-mula $q_t = 0$ saat $t = 0$ dan $q_t = q_t$ saat $t = t$, maka persamaan 2.6 dapat diintegrasikan lebih lanjut hingga menghasilkan persamaan 2.15 melalui perhitungan berikut ini :

$$\int_0^{q_t} \frac{dq_t}{(q_e - q_t)^2} = \int_0^t k_s dt \quad (2.7)$$

Dimisalkan : $u = q_e - q_t$, $\frac{du}{dq_t} = -1$, $dq_t = -du$

$$\int_0^{q_t} \frac{-du}{u^2} = \frac{1}{u} = \frac{1}{(q_e - q_t)} \Big|_0^{q_t} \quad (2.8)$$

$$\frac{1}{(q_e - q_t)} \Big|_0^{q_t} = k_s t \Big|_0^t \quad (2.9)$$

$$\frac{1}{(q_e - q_t)} - \frac{1}{(q_e - 0)} = k_s(t - 0) \quad (2.10)$$

$$\frac{1}{q_e - q_t} - \frac{1}{q_e} = k_s t \quad (2.11)$$

$$\frac{q_t}{q_e^2 - q_e q_t} = k_s t \quad (2.12)$$

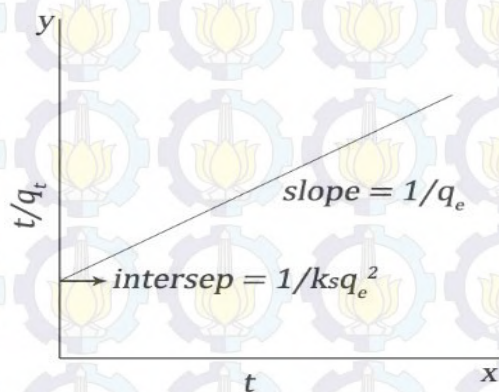
$$\frac{q_e^2}{q_t} - q_e = \frac{1}{k_s t} \quad (2.13)$$

$$\frac{q_e^2}{q_t} = \frac{1 + q_e k_s t}{k_s t} \quad (2.14)$$

Ruas kiri dan kanan dikalikan dengan t/q_e^2 sehingga persamaan 2.14 menjadi :

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_s q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (2.15)$$

Plot t/q_t dan t dari persamaan 2.15 tersebut akan menghasilkan grafik model kinetika orde dua semu seperti Gambar 2.9. Harga konstanta laju adsorpsi orde dua semu (k_s) dapat dihitung melalui intersep.



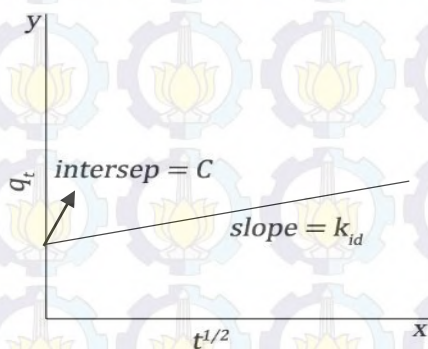
Gambar 2.10 Grafik model kinetika orde dua semu (berdasarkan Guererro dkk., 2010 dan Widiastuti dkk., 2011).

2.5.3 Difusi Intra Partikel

Model difusi intra-partikel digunakan untuk menentukan proses adsorpsi yang terjadi pada material berpori dan dinyatakan dalam persamaan 2.16 (Delavar dkk., 2012; Rashidi dkk., 2013; Widiastuti dkk., 2011).

$$q_t = k_{id} t^{1/2} + C \quad (2.16)$$

k_{id} ($\text{mmol g}^{-1} \text{ menit}^{-0.5}$) adalah konstanta laju difusi intra-partikel, t (menit) adalah waktu. Nilai C menyatakan ketebalan dari batas lapisan. Plot q_t dan $t^{1/2}$ berdasarkan persamaan 2.16 akan menghasilkan grafik model kinetika difusi laju partikel (Gambar 2.10). *Slope* yang dihasilkan dapat digunakan untuk menghitung konstanta laju difusi intra-partikel (k_{id}).



Gambar 2.11 Grafik model difusi intra partikel (berdasarkan Delavar, 2012).

2.6 Studi Termodinamika Adsorpsi CO₂

Proses adsorpsi dapat dikarakterisasi melalui penurunan total energi bebas dalam sistem tertutup. Parameter termodinamika adsorpsi gas CO₂ pada zeolit-X berpendukung *glasswool* berupa nilai entalpi (ΔH^0), entropi (ΔS^0) dan energi bebas Gibb's (ΔG^0) (Deng dkk., 2012 dan Zhang dkk., 2014) dapat ditentukan menggunakan persamaan Van't Hoff sebagai berikut :

$$\frac{\Delta H}{RT^2} - \frac{\Delta S}{RT} = \left(\frac{\partial \ln p}{\partial T} \right)_q \quad (2.17)$$

Persamaan 2.17 dapat diintegrasikan lebih lanjut hingga diperoleh persamaan 2.18:

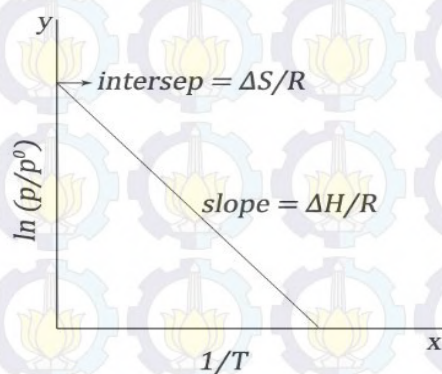
$$\ln \frac{P}{P^0} = \frac{\Delta H}{RT} - \frac{\Delta S}{R} \quad (2.18)$$

Dimana ΔH adalah entalpi adsorpsi (kJ/mol), T adalah suhu (K), p adalah tekanan pada saat kesetimbangan (bar), q menunjukkan kesetimbangan kapasitas adsorpsi dan R adalah tetapan gas (8,314 J/mol K), ΔS adalah entropi adsorpsi (J/mol K) (Zhang dkk., 2014).

Entalpi dan entropi adsorpsi CO₂ dihitung dengan memplot grafik antara $\ln P/P^0$ dengan $1/T$. *Slope* grafik menunjukkan harga dari $\Delta H/R$, sedangkan intersep akan menunjukkan harga $\Delta S/R$ (Gambar 2.11), sehingga harga entalpi dan entropi adsorpsi CO₂ dapat dihitung. Parameter termodinamika berupa energi bebas Gibb's (ΔG) dapat ditentukan dengan menggunakan Persamaan 2.19.

$$\Delta G_{ads}^0 = -RT \ln K = \Delta H_{ads}^0 - T\Delta S_{ads}^0 \quad (2.19)$$

K merupakan tetapan kesetimbangan yang bergantung pada suhu. Pada umumnya, harga tetapan K didapat dari persamaan isothermal Langmuir atau dapat dihitung dengan permodelan komputasi (Zhang dkk., 2014). R adalah tetapan gas (8,314 J/mol K), T adalah suhu (K), ΔS_{ads}^0 adalah entropi adsorpsi (J/mol K) (Delavar dkk., 2012).



Gambar 2.12 Grafik termodinamika adsorpsi (berdasarkan Delavar dkk., 2012).

Harga entalpi dapat menentukan jenis adsorpsi yang terjadi, saat entalpi mencapai 80 kJ/mol atau lebih maka terjadi adsorpsi secara kimia (kemisorpsi) dan harga yang lebih kecil menunjukkan adsorpsi secara fisika (fisorpsi) (Delavar dkk., 2012). Beberapa penelitian mengenai studi termodinamika adsorpsi karbon dioksida pada zeolit dirangkum pada Tabel 2.8.

Tabel 2.8 Data Termodinamika untuk adsorpsi karbon dioksida pada beberapa jenis zeolit.

Zeolit	ΔH (kJ mol ⁻¹)	ΔS (kJ mol ⁻¹)	ΔG (kJ mol ⁻¹)	Suhu (°C)	Tekanan (bar)	Pustaka
NaX	-34,16	-40,64	-22,00	25	1	Zhang dkk., 2014
NaY	-28,98	-35,48	-18,36	25	1	
13X	-31,50	-23,20	-2,94	75	1	Deng dkk., 2012
5A	-45,00	-42,60	-2,95	75	1	

Entalpi adsorpsi standar (ΔH^0) bernilai negatif menunjukkan bahwa reaksi berlangsung secara eksotermis dan melepaskan panas. Zeolit 5A memiliki perubahan entalpi yang lebih negatif dibandingkan zeolit NaX, NaY dan 13X (Tabel 2.7), sehingga zeolit A menghasilkan panas relatif paling tinggi dibandingkan jenis zeolit lainnya. Hal tersebut kurang menguntungkan untuk proses adsorpsi karena dapat menyebabkan kapasitas adsorpsi berkurang dalam kondisi adiabatik (Deng dkk., 2012). Harga entropi adsorpsi standar (ΔS^0) yang lebih negatif pada zeolit NaX dibandingkan zeolit NaY pada tekanan 1 bar, menjelaskan bahwa molekul adsorbat CO₂ memiliki keteraturan lebih tinggi karena kation Na⁺ pada zeolit NaX lebih banyak dibandingkan zeolit NaY (Zhang dkk., 2014). Oleh karena itu, interaksi antara momen kuadropol CO₂ dengan zeolit NaX

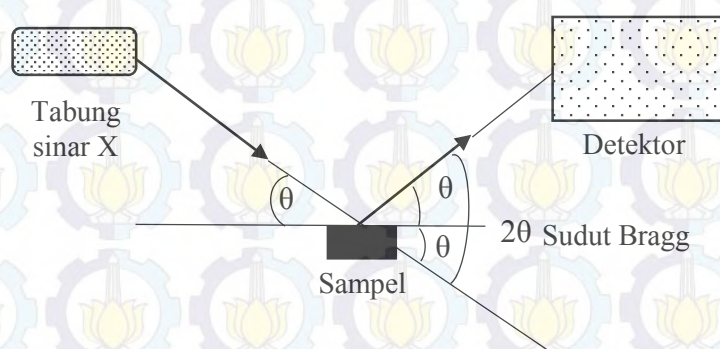
menjadi lebih kuat dan kapasitas adsorpsi bisa menjadi lebih tinggi. Selain itu, harga energi bebas Gibbs pada zeolit NaX juga relatif lebih tinggi yang menunjukkan reaksi berjalan lebih spontan dibandingkan ketiga zeolit lainnya. (Walton dkk., 2006 ; Deng dkk., 2012 dan Zhang dkk., 2014). Berdasarkan ketiga parameter termodinamika tersebut, zeolit-X memiliki afinitas yang lebih tinggi terhadap gas CO₂ dibandingkan zeolit-Y dan zeolit-A.

2.7 Karakterisasi

Karakter struktur padatan zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dapat diketahui dengan melakukan beberapa karakterisasi. Beberapa metode yang dapat digunakan dalam karakterisasi material padatan zeolit-X berpendukung serat *glasswool* diantaranya adalah *X-ray diffraction* (XRD), *Scanning Electron Microscope* (SEM), *Thermal Gravimetric Analysis* (TGA) dan *Differential Scanning Calorimetry* (DSC) .

2.7.1 Difraksi Sinar X (XRD)

Prinsip kerja XRD adalah sesuai dengan hukum Bragg pada Gambar 2.12. Sinar-X akan ditembakkan pada suatu bidang kristal. Saat sinar X dihamburkan oleh suatu zat yang memiliki keteraturan seperti kristal, pola difraksi akan dihasilkan karena memiliki gelombang yang sama dengan Sinar X.

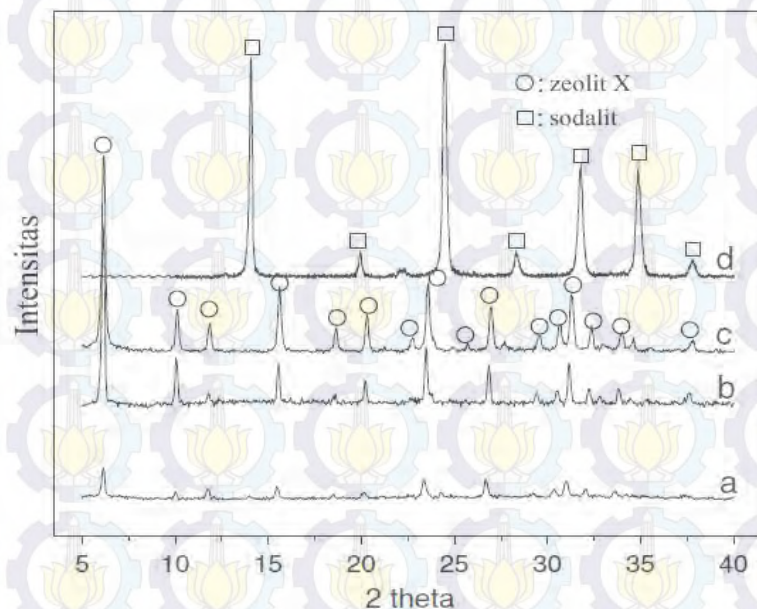


Gambar 2.13 Skema difraksi sinar X sesuai Hukum Bragg (berdasarkan West, 2014).

Makin banyak bidang kristal yang terdapat dalam sampel, makin kuat intensitas pembiasan yang dihasilkan. Melalui prinsip tersebut, instrumen XRD dapat digunakan untuk mengetahui letak atom atau ion dalam susunan kristal, sehingga

dapat mengidentifikasi struktur kristal (Skoog dkk., 2007). Pada saat proses karakterisasi, sinar-X yang dipakai pada umumnya adalah radiasi Cu-K α dengan panjang gelombang 1,54 Å (Miyake dkk., 2005).

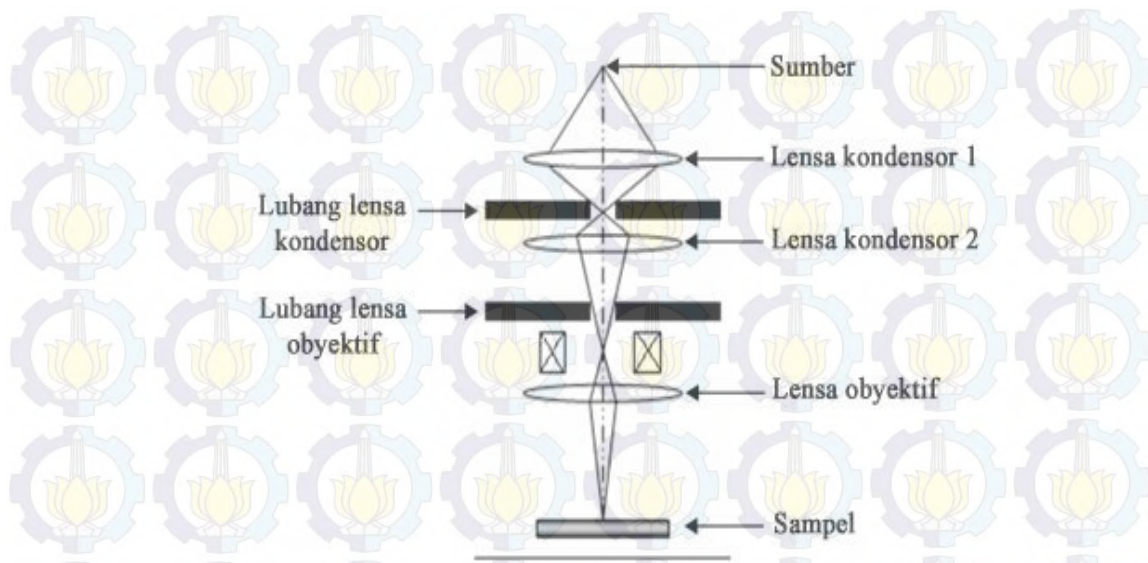
Karakterisasi XRD dilakukan pada zeolit berpendukung serat *glasswool* untuk mengkonfirmasi pembentukan zeolit dan dicocokkan dengan standar JCPDS berdasarkan pola difraksinya. Gambar 2.13 menunjukkan hasil XRD zeolit-X dengan variasi suhu hidrotermal 70°C (a) ; 80°C (b) ; 90°C (c) dan 130°C (d). Berdasarkan hasil XRD pada Gambar 2.13, suhu hidrotermal dapat mempengaruhi kristalinitas dari zeolit-X. Pada suhu yang terlalu tinggi, fasa zeolit-X akan berubah menjadi sodalit.



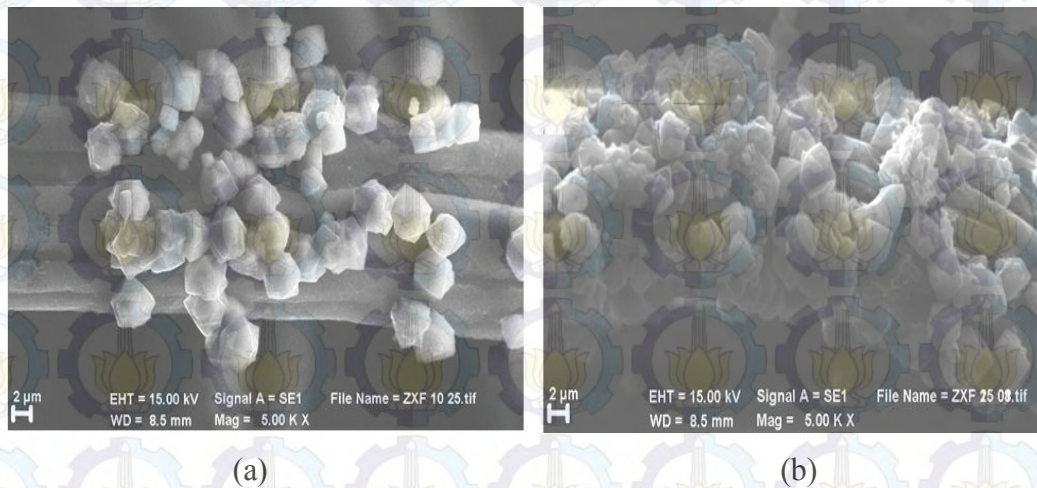
Gambar 2.14 Pola XRD pada zeolit-X (Zhang dkk., 2013).

2.7.2 Scanning Electron Microscope (SEM)

Prinsip kerja SEM adalah menembakkan sinar elektron pada permukaan padatan, kemudian memanfaatkan sinyal elektron yang didapat dari permukaan padatan tersebut untuk mengetahui struktur morfologi dan topologi (Mukhopadhyay, 2013). Analisis menggunakan SEM sangat berguna untuk mengetahui bentuk permukaan padatan seperti kristal.



Gambar 2.15 Skema SEM (berdasarkan Miyake, 2008 dan Mukhopadhyay, 2013).



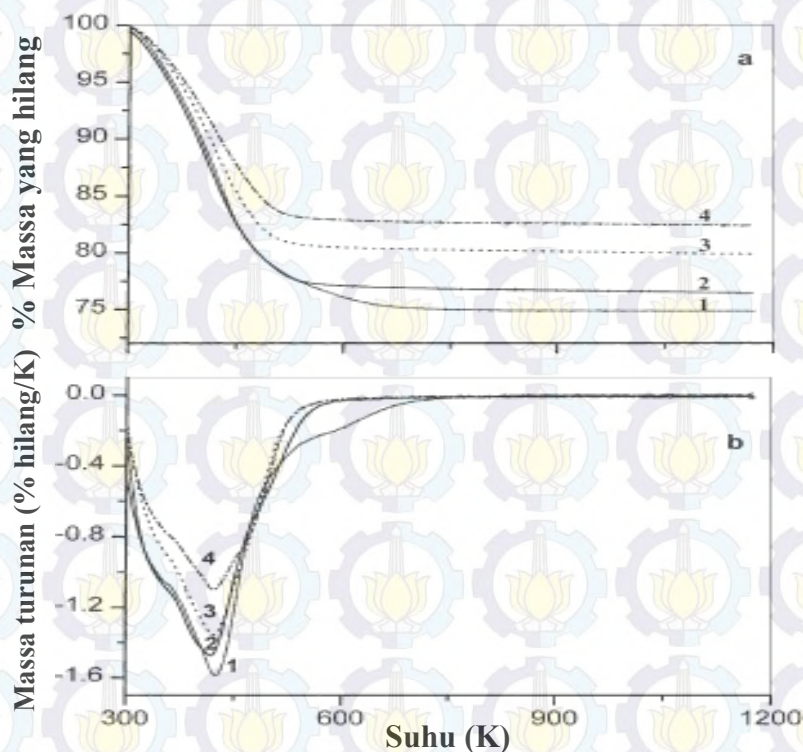
Gambar 2.16 Hasil SEM sintesis zeolit berpendukung serat dengan variasi waktu hidrotermal : (a) 10 jam dan (b) 25 jam (Devianti, 2014).

Dalam penelitian ini, karakterisasi SEM digunakan untuk melihat kristal zeolit yang menempel pada material pendukung berupa serat. Contoh hasil SEM material Zeolit-X berpendukung serat kaca dengan variasi waktu hidrotermal dapat dilihat pada Gambar 2.15. Kristal zeolit-X dengan waktu hidrotermal 25 jam, memiliki pertumbuhan kristal lebih baik dibandingkan dengan waktu hidrotermal 10 jam.

2.7.3 TGA-DSC

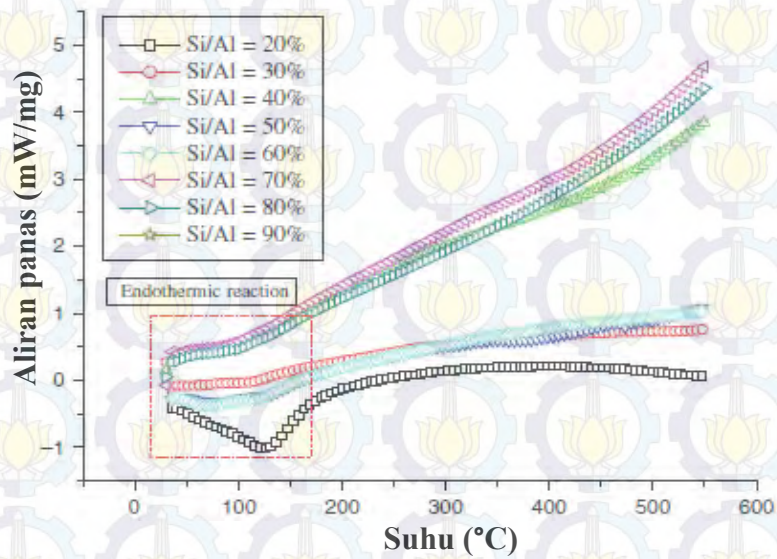
Teknik analisis termal digunakan untuk karakterisasi perubahan sifat fisik materi terhadap fungsi perubahan suhu. Teknik analisis termal TGA (*Thermal*

Gravimetric Analysis) digunakan untuk menentukan hilangnya massa suatu materi akibat terjadinya dekomposisi. Sedangkan DSC (*Differential Scanning Calorimetry*) digunakan untuk menentukan suhu dari suatu perubahan yang terjadi ketika material terkena panas. Prinsip kerja dari DSC adalah membandingkan panas yang dibutuhkan dari suatu sampel untuk mempertahankan suhu yang sama dengan material inert. Saat panas yang dibutuhkan oleh sampel lebih rendah daripada suhu material inert sebagai pembanding maka perubahan yang terjadi adalah endotermal dan sebaliknya (Joshi dkk., 2002 ; Wu dkk., 2012). Gambar 2.16 menunjukkan gambaran dari kurva TGA beserta kurva turunan massa (DTG) untuk mengamati perubahan berat yang terjadi.



Gambar 2.17 Kurva TGA (a) dan DTG (b) dari jenis zeolit X : (1) NaX ; (2) NaKX ; (3) NaRbX ; (4) NaCsX (Joshi dkk., 2002)

Joshi dkk. (2002) melakukan analisis TGA-DTG pada material zeolit-X dengan berbagai jenis kation. Berdasarkan kurva TGA-DTG tersebut, massa yang hilang pada suhu 300-600K dikarenakan oleh desorpsi air yang berada di permukaan material maupun di kerangka bagian dalam.



Gambar 2.18 Kurva DSC zeolit-X dengan berbagai rasio Si/Al (Wu dkk., 2012)

2.8 Metode Pengujian Adsorpsi CO₂

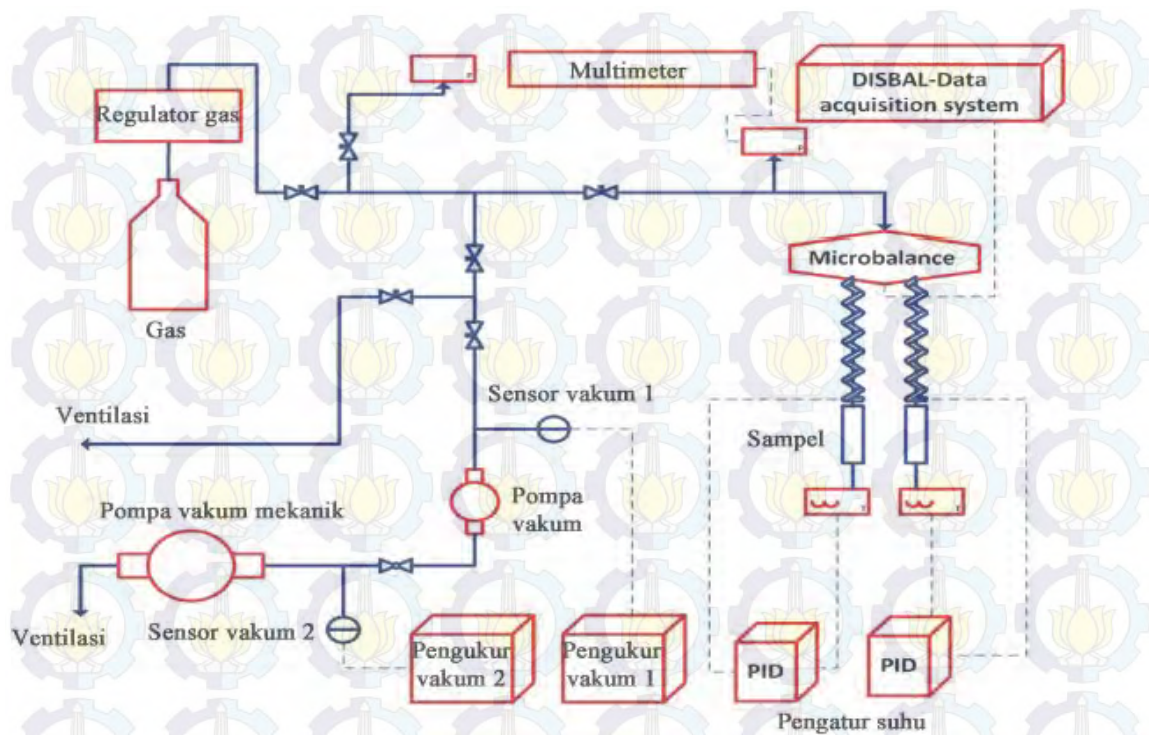
2.8.1 Metode Gravimetri

Kapasitas adsorpsi gas karbon dioksida dalam zeolit-X dapat diukur secara gravimetri melalui pengukuran massa sampel pada setiap interval waktu tertentu terhadap sampel zeolit-X berpendukung serat kaca. Pengukuran secara gravimetri dinyatakan dalam % berat sesuai persamaan 2.27.

$$\% \text{ berat} = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100\% \quad (2.20)$$

Dimana m_t adalah massa sampel setelah adsorpsi gas CO₂ sedangkan m_0 adalah massa sampel awal. Contoh skema pengukuran adsorpsi gas secara gravimetri dapat dilihat pada Gambar 2.19.

Metode pengukuran kapasitas adsorpsi gas secara gravimetri yang pernah dilakukan oleh Falahati dan Barz (2013) menggunakan peralatan *microbalance* yang disambungkan pada monitor (*DISBAL-Data acquisition system*) untuk mengetahui perubahan berat yang terjadi, regulator gas, pengatur suhu, pengatur tekanan gas yang disambungkan dengan multimeter, pengatur tekanan pompa vakum dan pompa vakum.



Gambar 2.19 Skema uji adsorpsi gas secara gravimetri (Falahati dan Barz, 2013).

BAB 3

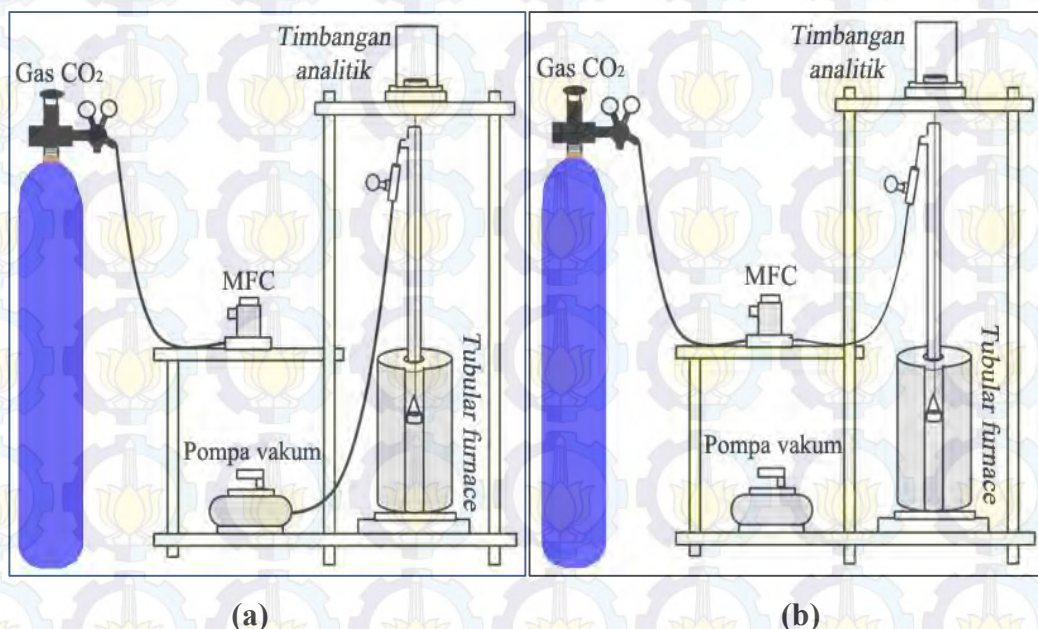
METODE PENELITIAN

3.1 Alat dan Bahan

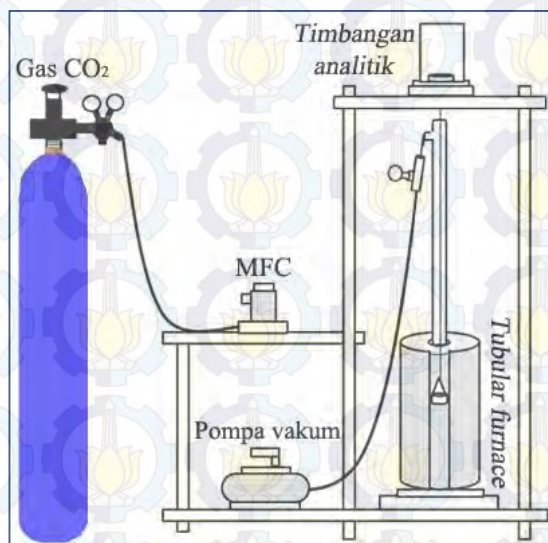
3.1.1 Alat

Peralatan yang digunakan untuk sintesis zeolit-X berpendukung serat dalam penelitian ini antara lain peralatan botol dan gelas polipropilena (PP), seperangkat hot plate-stirer, pengaduk magnetik, reaktor hidrotermal (*stainless steel autoclave*), oven, pH meter, seperangkat alat adsorpsi gas dengan metode gravimetri. Untuk karakterisasi padatan hasil sintesis, peralatan yang digunakan adalah *X-Ray Diffraction* (XRD), *Thermogravimetric analyzer* (TGA), *Differential scanning calorimetry* (DSC) dan *Scanning Electron Microscopy* (SEM).

Pengukuran adsorpsi-desorpsi gas karbon dioksida menggunakan metode gravimetri. Rangkaian alat pengukuran adsorpsi secara gravimetri terdiri dari timbangan analitik, tabung *furnace*, pompa vakum, *mass flow control* (MFC), *sampel holder* dan tabung gas CO₂ (Gambar 3.1).



Gambar 3.1 Rangkaian metode gravimetri adsorpsi CO₂ : (a) proses *degassing* ; (b) proses adsorpsi CO₂



Gambar 3.2 Rangkaian metode gravimetri desorpsi CO₂

3.1.2 Bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah air demineralisasi, padatan natrium aluminat (Sigma-Aldrich, 13404-5KG-R), larutan natrium silikat (Sigma-Aldrich, 338443-3L), pelet NaOH (99%, Merck, 011-002-00-6), serat *glass wool* sebagai material serat dan gas karbon dioksida *Ultra High Purity* (UHP) (99,99% CO₂).

3.2 Prosedur Kerja

3.2.1 Aktivasi Serat *Glasswool*

Material pendukung dalam sintesis zeolit-X yang digunakan di penelitian ini adalah serat *glasswool*. Sebelum digunakan sebagai material pendukung, serat *glasswool* diaktivasi terlebih dahulu dengan larutan NaOH. Serat *glasswool* ditimbang sebanyak 1 gram, kemudian direndam di dalam larutan NaOH 4M 20 mL selama 24 jam pada suhu ruang. Selanjutnya, serat *glasswool* dicuci dengan air demineralisasi hingga pH 7, lalu dikeringkan pada suhu 100°C hingga massa mencapai konstan.

3.2.2 Sintesis Zeolit-X Berpendukung Serat

Pada penelitian ini, dilakukan sintesis zeolit-X berpendukung serat menggunakan perbandingan komposisi molar $4 \text{ Na}_2\text{O} : 0,2 \text{ Al}_2\text{O}_3 : \text{SiO}_2 : 200 \text{ H}_2\text{O}$.

Larutan zeolit-X dibuat melalui beberapa tahapan. Pertama, padatan NaOH berbentuk pelet dilarutkan dalam air demineralisasi, kemudian dibagi menjadi dua bagian. Larutan NaOH bagian pertama dicampur dengan NaAlO_2 dan diberi nama larutan A, sedangkan larutan NaOH bagian kedua dicampur dengan Na_2SiO_3 serta diberi nama larutan B. Kedua jenis larutan diaduk dengan kecepatan konstan selama 10 menit pada suhu ruang. Larutan A lalu dicampur dengan larutan B, kemudian diaduk secara konstan selama 3 jam.

Tahapan selanjutnya adalah memasukkan larutan zeolit-X ke dalam reaktor hidrotermal. Serat *glasswool* yang telah teraktivasi dimasukkan ke dalam reaktor hidrotermal yang telah berisi larutan zeolit-X sebanyak 0,024% berat. Setelah itu dilakukan proses hidrotermal pada variasi suhu antara 90°C - 120°C dan variasi waktu antara 48 jam – 144 jam. Material hasil sintesis dicuci dengan air demineralisasi hingga pH 8, kemudian dikeringkan pada suhu 100°C selama 12 jam.

3.2.3 Karakterisasi Zeolit-X Berpendukung Serat

3.2.3.1 XRD

Karakterisasi padatan hasil sintesis zeolit-X berpendukung serat dilakukan dengan teknik difraksi sinar-X (XRD) pada skala 2θ antara 5° - 50° . Sumber radiasi yang digunakan adalah $\text{CuK}\alpha$ dengan panjang gelombang $1,54 \text{ \AA}$. Data yang diperoleh berupa harga d *spacing*, 2θ , dan intensitas puncak difraksi dari sampel. Difraktogram zeolit-X berpendukung serat yang didapatkan tersebut kemudian dibandingkan dengan standar data difraksi dalam JCPDS-ICDD.

3.2.3.2 TGA-DSC

Karakterisasi TGA-DSC dilakukan pada serat *glasswool* teraktivasi (GW), zeolit-X tanpa serat (ZX) dan zeolit-X berpendukung serat (ZXF) untuk karakterisasi perubahan fisik yang terjadi pada ketiga sampel terhadap fungsi suhu. Hasil karakterisasi TGA-DSC tersebut digunakan untuk mempelajari pengaruh suhu saat proses *degassing* dan adsorpsi terhadap perubahan fisik yang terjadi pada ketiga sampel.

3.2.3.3 SEM

Morfologi padatan kristal hasil sintesis pada permukaan serat dapat diketahui melalui analisis SEM. Sampel diletakkan pada permukaan *holder* yang telah diberi *carbon tape*, kemudian dilakukan pelapisan emas pada permukaan sampel (*coating*). Setelah dilakukan *coating*, sampel dimasukkan dalam ruang sampel yang telah divakum terlebih dahulu, lalu dilakukan pengamatan morfologi sampel dengan perbesaran tertentu.

3.2.3.4 Adsorpsi Gas Nitrogen

Karakter pori zeolit-X berpendukung serat dianalisis menggunakan adsorpsi N_2 pada 77K dengan metode standar BET (Brunauer – Emmett – Teller). Sebelum dianalisis, sampel di *degassing* terlebih dahulu dalam keadaan vakum untuk menghilangkan gas-gas lain yang mungkin terdapat pada permukaan padatan. Hasil analisis yang didapatkan adalah luas permukaan, diameter pori, serta volume pori zeolit-X berpendukung serat.

3.2.4 Penentuan Kapasitas Adsorpsi-Desorpsi CO_2

3.2.4.1 Metode Gravimetri

Pengujian kapasitas penyerapan karbon dioksida dilakukan pada sampel zeolit-X berpendukung serat. Sampel diambil sebanyak 2 gram, lalu dikeringkan selama 2 jam pada suhu $105^\circ C$. Setelah itu, didinginkan pada suhu ruang dan disimpan dalam desikator.

Masing-masing sampel yang telah dikeringkan tersebut, diambil lagi sebanyak 1 gram dan dimasukkan ke dalam *sample holder* pada rangkaian alat gravimetri. Selanjutnya, sampel di *degassing* menggunakan *tubular furnace* dalam kondisi vakum seperti ditunjukkan pada Gambar 3.1 (a). Setelah proses *degassing*, suhu sistem diatur pada variasi tertentu yaitu $30^\circ C$, $40^\circ C$ dan $50^\circ C$ pada tekanan 1 bar untuk proses adsorpsi. Berat sampel diamati hingga konstan, lalu dicatat sebagai berat awal (m_0). Mass Flow Control (MFC) dinyalakan, lalu ditunggu hingga menunjukkan angka nol. Laju aliran gas karbon dioksida diatur pada 20 mL/menit menggunakan MFC. Knop tabung gas CO_2 dibuka perlahan hingga gas dapat mengalir ke dalam sistem seperti pada Gambar 3.1 (b). Pengamatan dilakukan

setiap 1 menit terhadap perubahan berat sebagai berat akhir setelah adsorpsi (m_t) hingga diperoleh berat konstan. Kapasitas adsorpsi karbon dioksida menggunakan metode gravimetri [%CO₂(Ads)] dapat dihitung menggunakan persamaan 3.1:

$$\%CO_2(Ads) = \frac{(m_t - m_0)}{m_0} \times 100\% \quad (3.1)$$

Pada proses desorpsi, dilakukan langsung setelah proses adsorpsi mencapai kesetimbangan dengan bantuan pompa vakum seperti rangkaian alat yang ditunjukkan oleh Gambar 3.2. Pengurangan masa yang terjadi dicatat setiap 1 menit hingga mencapai masa konstan. Masa akhir saat adsorpsi mencapai kesetimbangan dicatat sebagai masa awal desorpsi (m_0), sedangkan masa yang berkurang tiap 1 menit disebut dengan m_t . Kapasitas CO₂ yang telah terdesorp [%CO₂(Des)] dapat dihitung menggunakan persamaan (3.2).

$$\%CO_2(Des) = \frac{(m_0 - m_t)}{m_0} \times 100\% \quad (3.2)$$

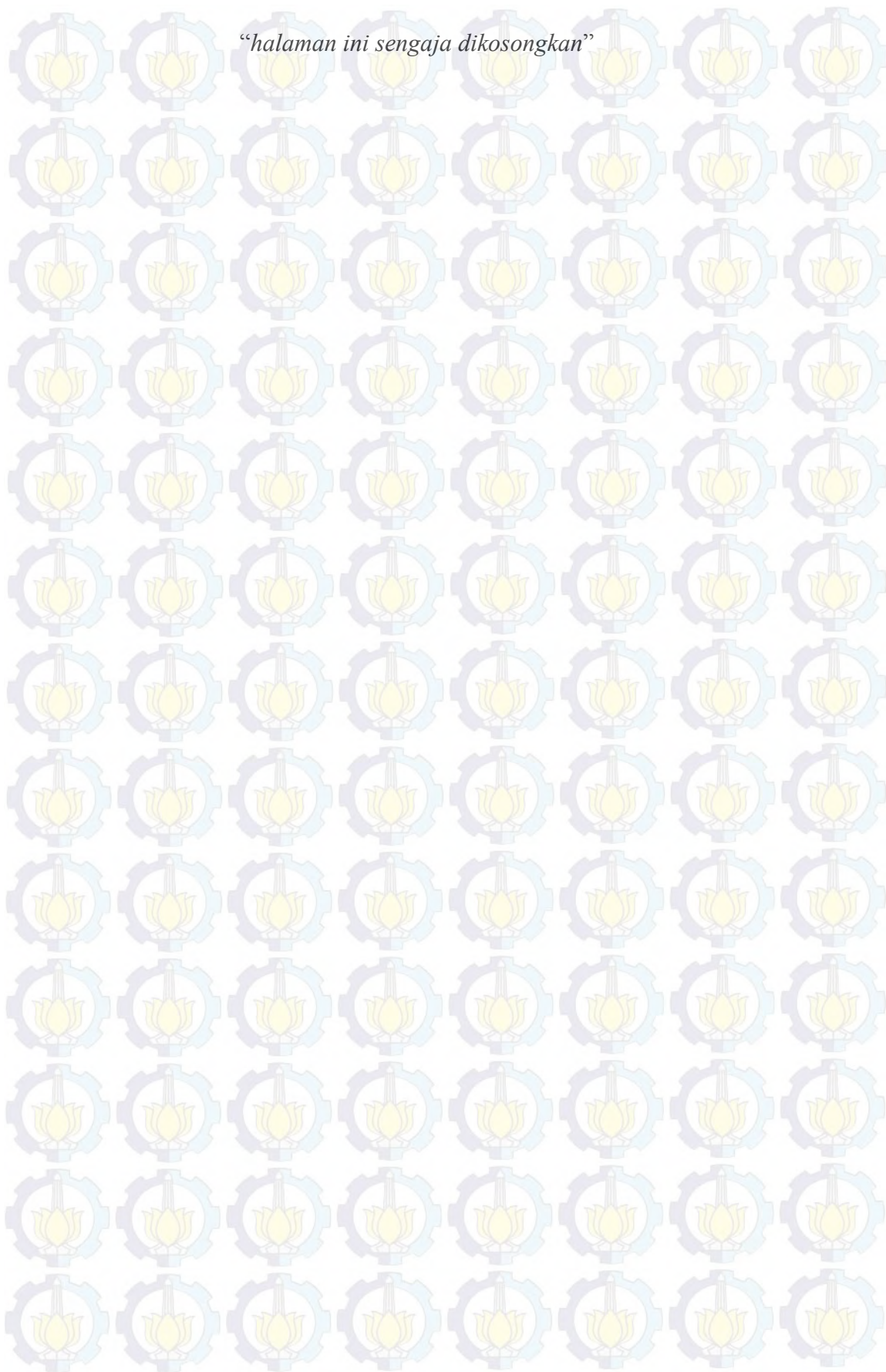
3.2.5 Penentuan Model Kinetika Adsorpsi CO₂

Hasil kapasitas adsorpsi CO₂ pada zeolit-X berpendukung serat dalam satuan % berat dan waktu adsorpsi digunakan untuk menghitung laju adsorpsi CO₂ dengan beberapa model kinetika yaitu orde satu semu, orde dua semu dan difusi intra partikel. Penentuan model kinetika adsorpsi dilakukan pada variasi suhu 30°C, 40°C dan 50°C serta tekanan 1 bar. Persamaan yang digunakan untuk menentukan model kinetika adsorpsi adalah persamaan 2.5 (orde satu semu), 2.15 (orde dua semu) dan 2.16 (difusi intra partikel) pada sub bab 2.5 di Bab 2.

3.2.6 Penentuan Termodinamika Adsorpsi CO₂

Data hasil adsorpsi CO₂ dengan variasi suhu 30°C, 40°C dan 50°C pada tekanan 1 bar digunakan untuk menghitung aspek termodinamika adsorpsi CO₂, yaitu entalpi (ΔH), entropi (ΔS) dan energi bebas Gibbs (ΔG). Persamaan yang digunakan untuk menghitung aspek termodinamika adalah persamaan 2.23 dan 2.24 pada sub bab 2.6 di Bab 2.

“halaman ini sengaja dikosongkan”



BAB 4

HASIL DAN PEMBAHASAN

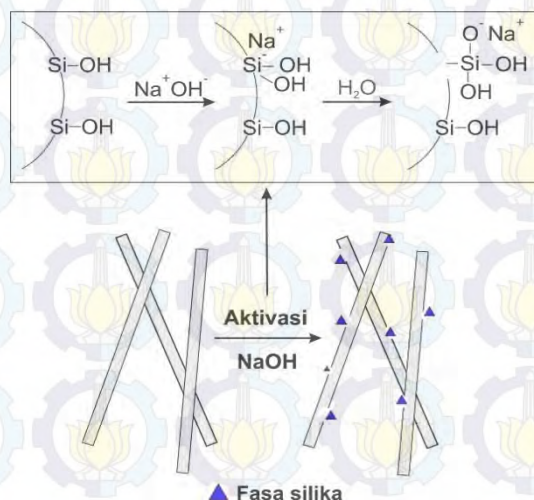
Pada bagian hasil dan pembahasan dijelaskan mengenai pengaruh suhu dan waktu hidrotermal terhadap kristalinitas zeolit-X serta jenis fasa zeolit yang terbentuk pada permukaan serat *glasswool*. Sintesis zeolit-X pada permukaan serat *glasswool* dilakukan menggunakan metode hidrotermal sederhana. Selanjutnya, material hasil sintesis yang memiliki kristalinitas zeolit-X paling tinggi, diuji kapasitas adsorpsi-desorpsi CO₂ menggunakan metode gravimetri. Karakterisasi material zeolit-X berpendukung serat *glasswool* diamati menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD), *Scanning Electron Microscopy* (SEM), *Thermal Gravimetric Analysis* (TGA) dan *Differential Scanning Calorimetry* (DSC) .

4.1 Sintesis Zeolit-X pada Permukaan *Glasswool*

Penelitian ini diawali dengan melakukan aktivasi terhadap serat *glasswool* yang akan digunakan dalam sintesis zeolit-X sebagai material pendukung, sesuai penelitian sebelumnya (Devianti, 2014 ; Puspita, 2015 ; Tyastari, 2015). Serat *glasswool* diaktivasi terlebih dahulu menggunakan larutan NaOH dengan kondisi optimal pada konsentrasi 4M selama 24 jam (Wardani, 2014). Serat *glasswool* yang teraktivasi digunakan sebagai material pendukung dalam sintesis zeolit-X.

Mekanisme aktivasi *glasswool* ditunjukkan oleh Gambar 4.1a. Berdasarkan penelitian sebelumnya, aktivasi dengan alkali sangat berpengaruh terhadap proses sintesis zeolit. Proses aktivasi serat *glasswool* bertujuan untuk merusak permukaan serat, lalu mengeluarkan fasa silika dalam serat *glasswool* dan terbentuk sisi aktif pada permukaannya. Hasil tersebut mengacu pada Gambar 2.4 (subbab 2.3) yang menjelaskan bahwa topografi permukaan *glasswool* setelah aktivasi memiliki tingkat kekasaran yang lebih tinggi dibandingkan serat *glasswool* sebelum aktivasi akibat larutan NaOH yang berhasil merusak permukaan serat dan mengeluarkan fasa silika (Wardani, 2014). Sisi aktif yang terbentuk telah menyebabkan nukleasi dan pertumbuhan kristal zeolit pada permukaan serat *glass wool* (Xiaochun dkk., 2004 ; Yamazaki and Tsutsumi, 1995). Selain itu, atom oksigen dalam fasa silika

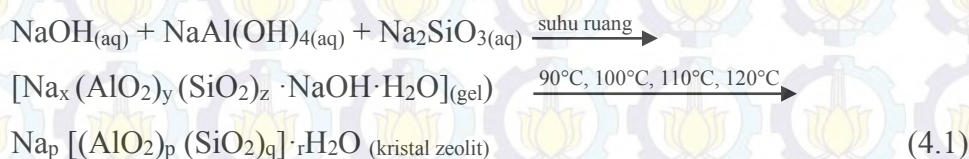
bertindak sebagai jembatan yang menghubungkan kerangka zeolit, sehingga kristal zeolit-X dapat tumbuh pada permukaan *glasswool* (Landong dkk., 2005 ; Martínez dkk., 2001 ; Okada dkk., 2000 ; Yamazaki dan Tsutsumi, 1995).

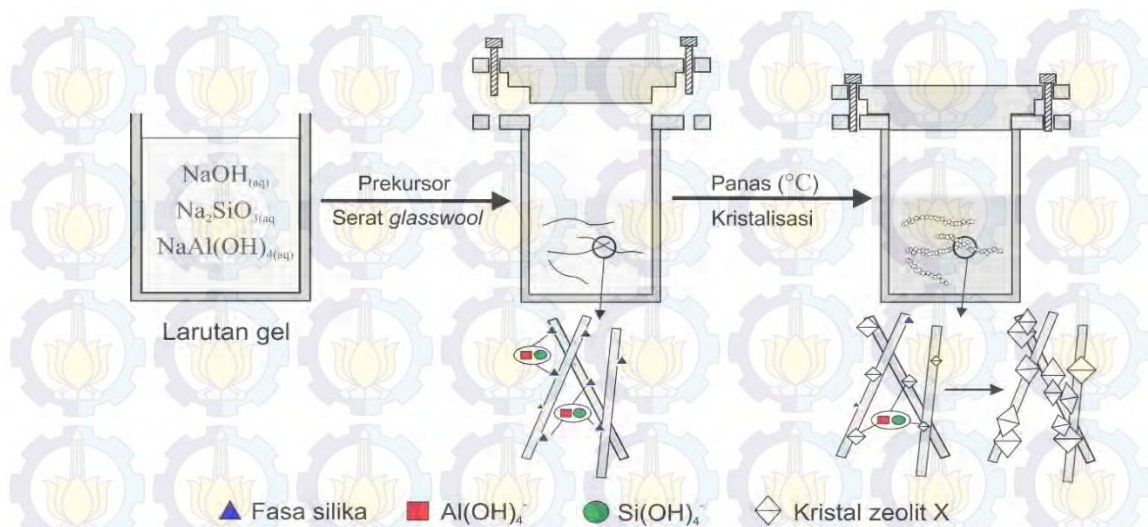


Gambar 4.1 Aktivasi *glasswool* (berdasarkan Groen dkk., 2007 ; Yamazaki dan Tsutsumi, 1995).

Proses selanjutnya setelah aktivasi *glasswool* adalah membuat larutan gel zeolit pada komposisi molar sesuai penelitian sebelumnya (Zhang^b dkk., 2013). Prekursor yang digunakan adalah NaAlO_2 , Na_2SiO_3 dan NaOH , serta air demineralisasi sebagai pelarut. Seluruh prekursor kemudian diaduk konstan selama 3 jam supaya larutan gel zeolit menjadi homogen. Setelah itu, larutan dimasukkan ke dalam autoklaf beserta serat *glasswool* teraktivasi sejumlah 0,024% berat untuk proses hidrotermal dengan variasi suhu dan waktu.

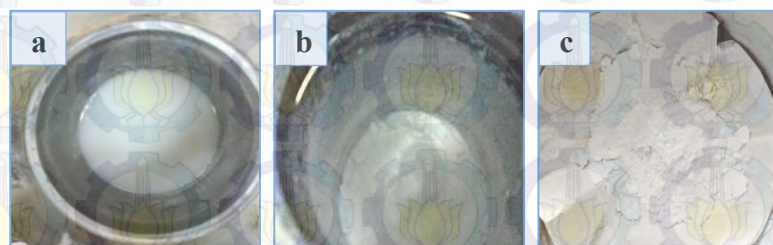
Reaksi yang terjadi pada proses pembentukan kristal zeolit dengan metode hidrotermal dapat dilihat pada Persamaan 4.1 yang diilustrasikan pada Gambar 4.2 (berdasarkan Ojha dkk., 2004 ; Cundy dan Cox, 2005 ; Villamizar dkk., 2012). Satuan dasar penyusun zeolit seperti $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ dan $\text{Si}(\text{OH})_4^-$ dari prekursor akan berinteraksi membentuk kerangka jaringan tiga dimensi dengan atom oksigen dari *glasswool*, sehingga kristal zeolit-X akan ternukleasi di atas permukaan *glasswool*, lalu mulai tumbuh dan pada akhirnya akan memenuhi permukaan serat *glasswool*.





Gambar 4.2 Ilustrasi pembentukan kristal zeolit dengan metode hidrotermal.

Material hasil sintesis berupa campuran padatan dan serat berwarna putih (Gambar 4.3 b) disaring, serta dicuci dengan air demineralisasi hingga $\text{pH} < 8$. Pencucian dilakukan untuk menghilangkan pengotor dan NaOH berlebih dalam material zeolit-X berpendukung serat *glasswool*. Setelah itu, padatan dikeringkan dalam oven pada suhu 100°C hingga berat mencapai konstan untuk menghilangkan kandungan air yang terikat secara fisik akibat proses pencucian (Gambar 4.3 c).



Gambar 4.3 a) larutan gel zeolit sebelum proses hidrotermal, b) setelah proses hidrotermal, c) zeolit-X serat setelah proses pengeringan.

4.2 Pengaruh Suhu dan Waktu Hidrotermal Terhadap Kristalinitas Zeolit-X di Atas Permukaan Serat *Glasswool*

Salah satu faktor yang mempengaruhi kristalinitas pada permukaan serat *glasswool* adalah suhu dan waktu hidrotermal. Zeolit-X merupakan fasa metastabil yang akan berubah menjadi fasa lain yang lebih stabil jika dibiarkan dalam pereaksinya dalam jangka waktu yang lama pada suhu tertentu (Cundy dan Cox, 2005 ; Okada dkk., 2000 ; Zhang^a dkk., 2013). Oleh karena itu, sintesis zeolit-X

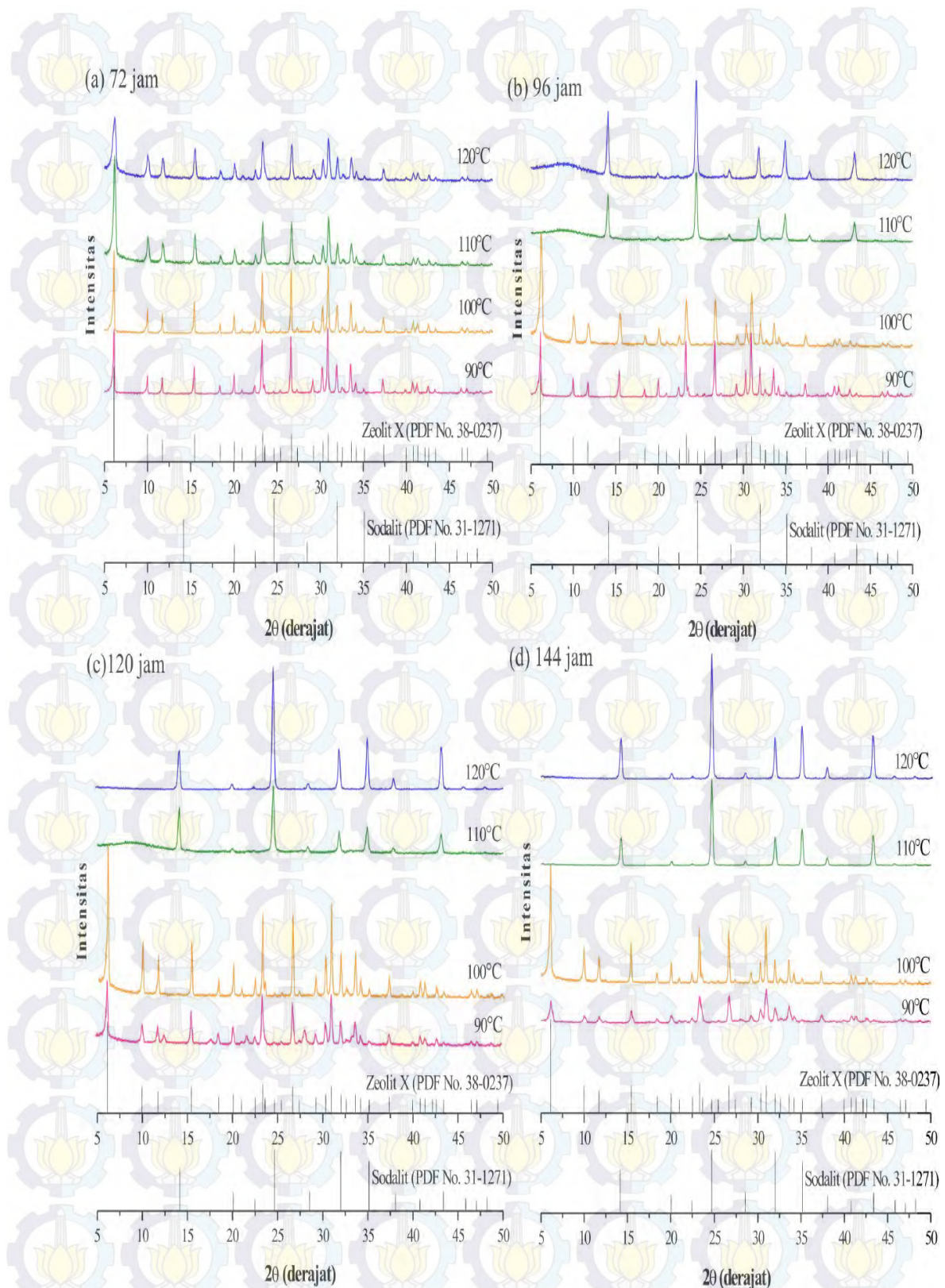
berpendukung serat *glasswool* dilakukan pada berbagai suhu dan waktu hidrotermal untuk mengetahui pengaruhnya terhadap fasa kristal zeolit yang tumbuh.

4.2.1 Pengaruh Suhu Hidrotermal Terhadap Kristalinitas Zeolit-X Pada Permukaan *Glasswool*

Pengaruh suhu hidrotermal terhadap pembentukan fasa zeolit di atas permukaan *glasswool*, dipelajari dengan melakukan variasi suhu hidrotermal. variasi suhu yang digunakan dalam penelitian ini adalah 90°C, 100°C, 110°C dan 120°C. Semua variasi suhu hidrotermal tersebut dilakukan pada waktu reaksi yang sama, 72 jam.

Gambar 4.4 (a) menunjukkan hasil karakterisasi XRD pada variasi suhu 90°C, 100°C, 110°C dan 120°C dengan waktu hidrotermal 72 jam. Saat suhu hidrotermal mencapai 90°C, puncak khas zeolit-X pada $2\theta = 6,10^\circ$; $9,98^\circ$; $11,72^\circ$; $15,45^\circ$; $23,34^\circ$; $26,68^\circ$ dan $30,97^\circ$ (PDF nomer 38-0237) telah muncul pada difraktogram, menunjukkan bahwa kristal zeolit-X telah tumbuh pada permukaan serat *glasswool*. Intensitas puncak khas zeolit-X semakin meningkat saat suhu hidrotermal dinaikkan hingga mencapai 110°C, lalu sedikit menurun saat suhu mencapai 120°C. Fasa zeolit-X belum berubah menjadi fasa sodalit dengan kondisi hidrotermal antara suhu 90°C-120°C selama 72 jam, sesuai dengan hasil penelitian Tounsi dkk. (2009) dan Zhang^a dkk. (2013) bahwa zeolit-X akan berubah fasa menjadi sodalit pada suhu 130°C.

Kecenderungan intensitas puncak khas zeolit-X yang terbentuk pada Gambar 4.4 (a) tersebut berbeda dengan Gambar 4.4 (b) yang menggunakan variasi suhu antara 90°C-120°C dengan waktu hidrotermal konstan 96 jam. Puncak khas zeolit-X mulai terbentuk pada suhu 90°C, selanjutnya intensitas puncak semakin meningkat pada suhu 100°C. Ketika suhu hidrotermal dinaikkan dari 110°C hingga 120°C, muncul puncak khas pada $2\theta = 14,65^\circ$; $24,65^\circ$; $31,99^\circ$; $35,13^\circ$ dan $43,39^\circ$ (PDF nomer 31-1271) yang merupakan fasa sodalit. Hasil tersebut memiliki kecenderungan yang sama dengan hasil karakterisasi XRD zeolit-X berpendukung serat *glasswool* pada variasi suhu 90°C-120°C dengan waktu hidrotermal konstan 120 jam (Gambar 4.4c) dan 144 jam (Gambar 4.4d). Fasa zeolit-X telah berubah seluruhnya menjadi sodalit pada kondisi suhu hidrotermal 110°C-120°C.



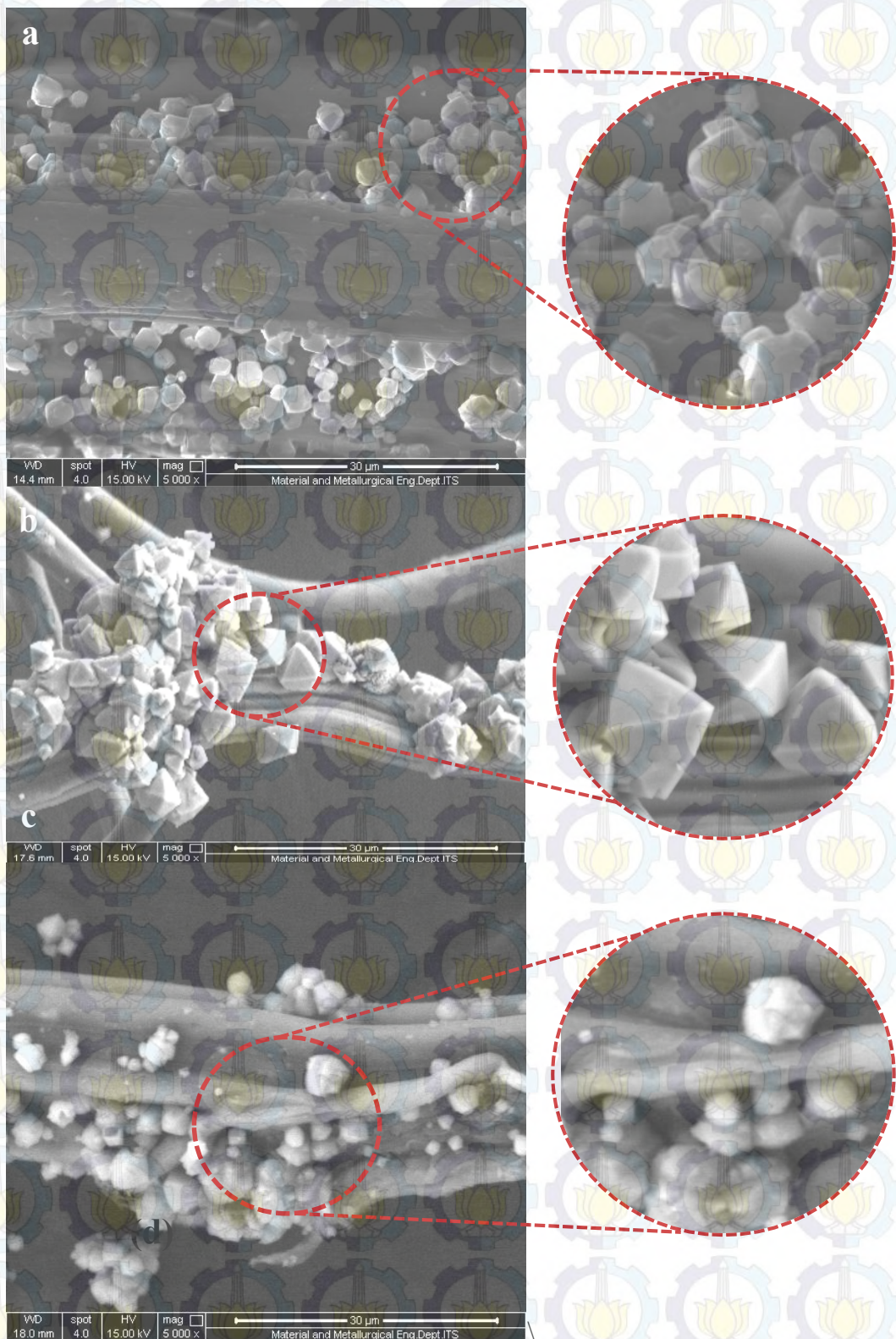
Gambar 4.4 Pengaruh variasi suhu hidrotermal pada waktu hidrotermal konstan :
(a) 72 jam (b) 96 jam (c) 120 jam dan (d) 144 jam.

Berdasarkan aturan Ostwald tentang transformasi berurutan (*Ostwald's rule of successive transformation*), fasa sodalit terbentuk akibat transformasi fasa zeolit-X (faujasit) yang merupakan fasa metastabil ke fasa sodalit yang lebih stabil (Barrer, 1988 ; Byrappa dan Yoshimura, 2013 ; Molina dan Poole, 2004 ; Tounsi dkk., 2009 ; Zhang^a dkk., 2013). Pada suhu hidrotermal yang mencapai 110°C, kerangka Si dapat bereaksi lagi dengan gel zeolit (*mother liquor*) dan menghasilkan kerangka ekstra Si, mengakibatkan perubahan fasa dari zeolit-X menjadi sodalit (Molina dan Poole, 2004 ; Okada dkk., 2000 ; Zhang^a dkk., 2013). Oleh karena itu, transformasi berurutan yang terjadi saat sintesis zeolit-X berpendukung serat sesuai aturan Ostwald dapat ditulis sebagai berikut :



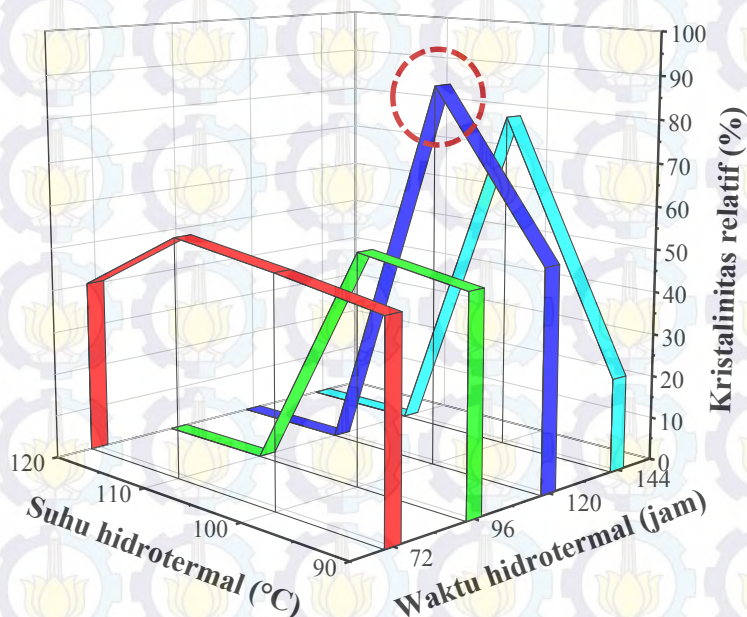
Morfologi fasa zeolit pada permukaan serat *glasswool* dengan variasi suhu hidrotermal 90°C-120°C selama 120 jam dapat dilihat pada Gambar 4.5. Pada suhu 90°C (Gambar 4.5a) dan 100°C (Gambar 4.5b), terlihat kristal zeolit-X berbentuk oktahedral (Purnomo dkk., 2000) telah tumbuh pada permukaan serat *glasswool*. Mikrograf pada Gambar 4.5c. menunjukkan kristal berbentuk oktahedral yang telah terdistorsi tidak beraturan pada sisi-sisinya, sehingga berbentuk seperti bola pada permukaan serat *glasswool*. Kristal berbentuk bola tersebut merupakan fasa sodalit yang terbentuk ketika suhu hidrotermal mencapai 110°C.

Hasil pengamatan morfologi fasa zeolit pada permukaan serat *glasswool* tersebut sesuai dengan grafik kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat *glasswool* (Gambar 4.5d). Pada suhu 100°C, kristalinitas fasa zeolit-X mencapai kristalinitas tertinggi, dibuktikan dengan mikrograf pada Gambar 4.5b. Morfologi kristal oktahedral yang terbentuk pada Gambar 4.5b lebih sempurna dan kristalin jika dibandingkan dengan kristal oktahedral pada Gambar 4.5a. Sedangkan pada suhu 110°C, kristalinitas relatif menunjukkan angka nol. Hal tersebut mengindikasikan bahwa fasa zeolit-X telah berubah menjadi fasa sodalit, seperti yang telah ditunjukkan oleh Gambar 4.5c. Hasil pengamatan morfologi fasa zeolit-X di atas permukaan serat *glasswool* tersebut mengkonfirmasi hasil karakterisasi XRD pada Gambar 4.4c.



Gambar. 4.5 Morfologi fasa zeolit pada permukaan serat *glasswool* dengan variasi suhu hidrotermal selama 120 jam : (a) 90°C; (b) 100°C; (c) 110°C

Hasil optimasi pengaruh suhu hidrotermal dapat dilihat pada Gambar 4.6 yang merupakan plot 3 dimensional dari kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat *glasswool* pada variasi suhu hidrotermal. Dari plot 3 dimensional tersebut, jelas terlihat bahwa puncak kristalinitas paling tinggi terjadi ketika suhu mencapai 100°C.



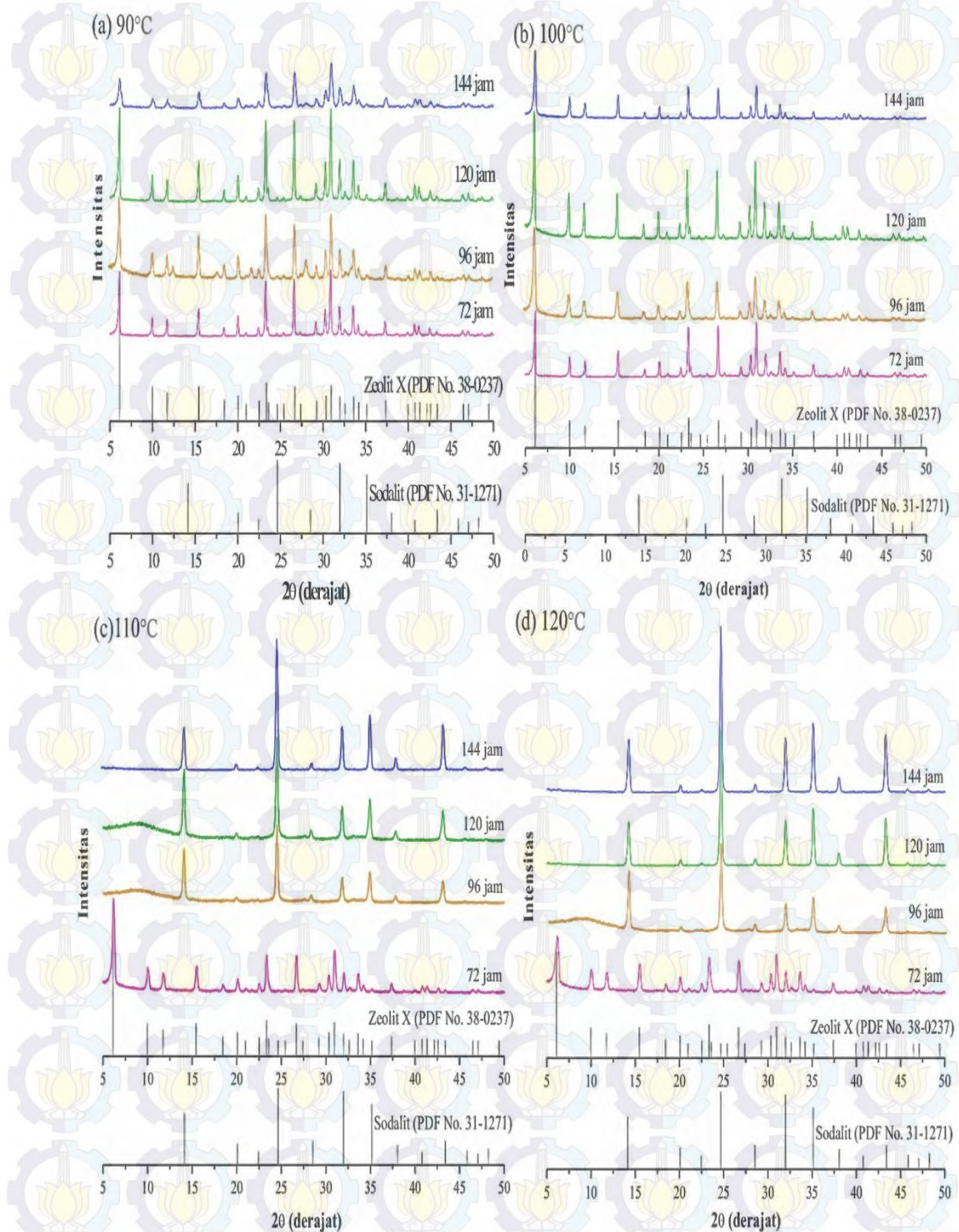
Gambar 4.6 Plot 3D kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat dengan variasi suhu hidrotermal.

4.2.2 Pengaruh Waktu Hidrotermal Terhadap Kristalinitas Zeolit-X Pada Permukaan *Glasswool*

Pembentukan fasa zeolit di atas permukaan serat *glasswool* juga dipengaruhi oleh waktu hidrotermal. Pengaruh waktu hidrotermal terhadap kristalinitas dan fasa zeolit yang terbentuk pada permukaan serat, dipelajari dengan melakukan variasi suhu hidrotermal 72 jam, 96 jam, 120 jam dan 144 jam.

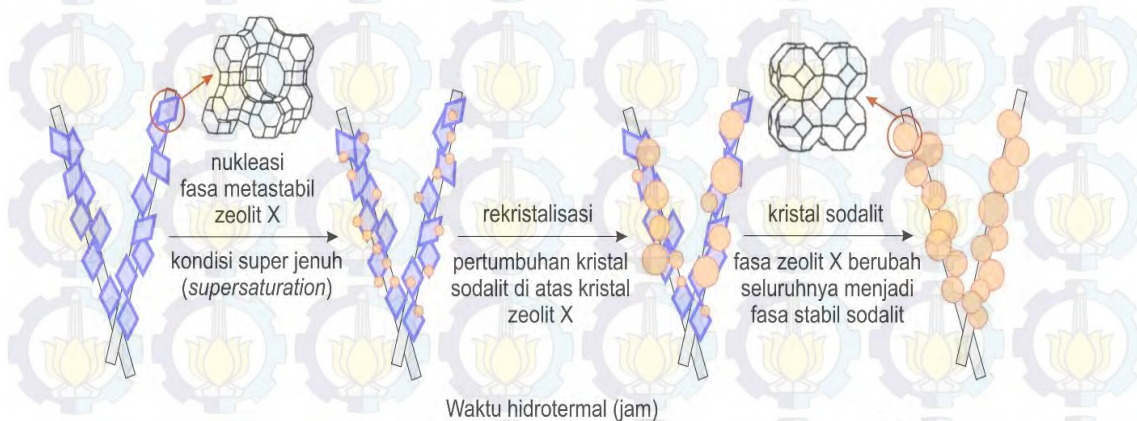
Fasa zeolit-X terbentuk saat waktu hidrotermal 72 jam pada masing-masing suhu hidrotermal yang dijalankan konstan, yaitu 90°C , 100°C , 110°C dan 120°C (Gambar 4.7a-d). Ketika waktu hidrotermal dinaikkan dari 96 jam hingga 144 jam, fasa zeolit-X masih terbentuk pada suhu hidrotermal 90°C (Gambar 4.7a) dan 100°C (Gambar 4.7b). Sebaliknya, fasa sodalit justru mulai terbentuk dengan waktu yang sama antara 96 jam – 144 jam, pada suhu hidrotermal konstan 110°C (Gambar 4.7c) dan 120°C (Gambar 4.7d). Hal tersebut mengindikasikan bahwa aturan

Ostwald tentang transformasi berurutan juga berlaku di dalam sintesis zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dengan variasi waktu hidrotermal.



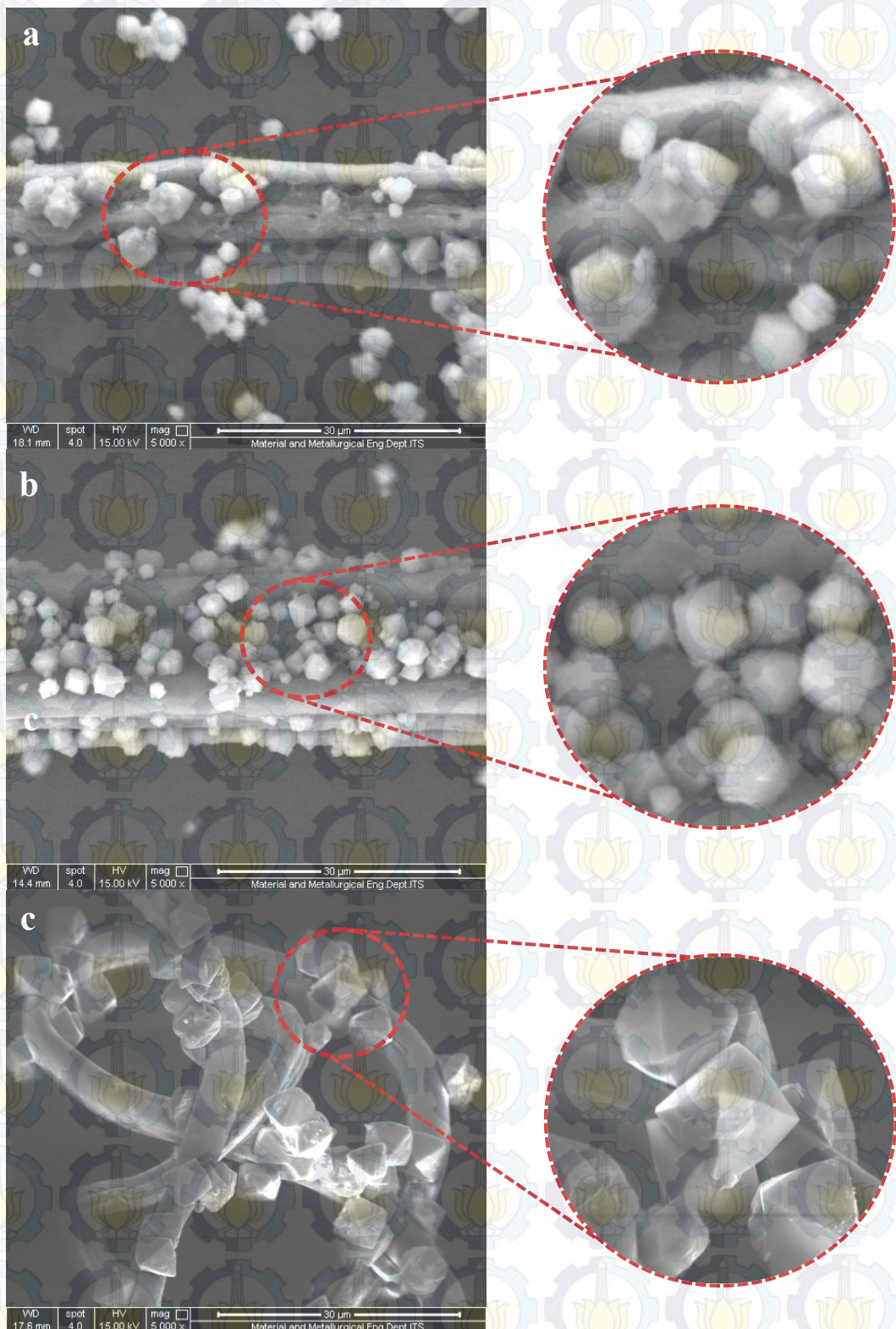
Gambar 4.7 Pengaruh variasi waktu hidrotermal pada suhu hidrotermal konstan : (a) 90°C (b) 100°C (c) 110°C dan (d) 120°C.

Gambar 4.8 merupakan ilustrasi aturan Ostwald tentang transformasi berurutan yang terjadi saat fasa stabil zeolit-X berubah menjadi fasa sodalit. Penambahan waktu hidrotermal tertentu dalam sintesis zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dapat menyebabkan gel zeolit (*mother liquor*) menjadi semakin jenuh hingga mencapai kondisi super jenuh (*supersaturation*). Ketika kristal zeolit-X yang telah terbentuk masih kontak dengan gel zeolit yang mengalami super jenuh, maka akan terjadi nukleasi kristal sodalit yang lebih stabil di atas kristal zeolit-X (Barrer, 1988 ; Molina dan Poole, 2004). Selanjutnya, kristal sodalit yang lebih stabil tersebut akan terus tumbuh hingga kristal zeolit-X pada akhirnya akan tertindih oleh pertumbuhan kristal sodalit. Fasa zeolit-X di atas permukaan serat *glasswool* pun telah berubah seluruhnya menjadi fasa sodalit. (Barrer, 1988 ; Byrappa and Yoshimura, 2013 ; Molina and Poole, 2004 ; Tounsi et al., 2009).

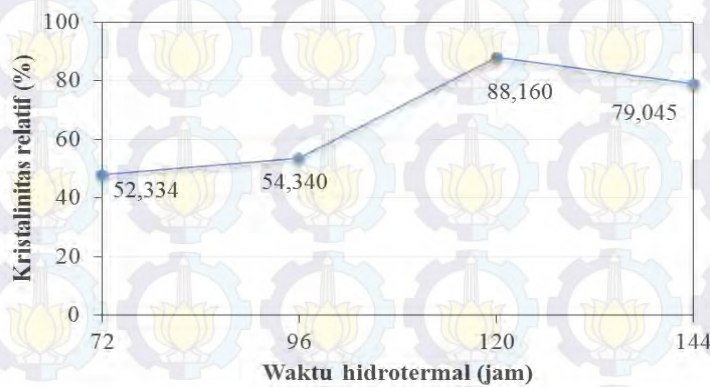


Gambar 4.8 Aturan Ostwald tentang perubahan fasa zeolit-X menjadi sodalit di atas permukaan serat *glasswool* (berdasarkan Barrer, 1988 ; Byrappa dan Yoshimura, 2013).

Mikrograf SEM pada zeolit-X berpendukung serat *glasswool* pada suhu hidrotermal optimal, yaitu 100°C dengan variasi waktu hidrotermal 72 jam, 96 jam dan 120 jam, ditunjukkan oleh Gambar 4.9. Kristal berbentuk oktahedral, terlihat pada Gambar 4.9a - 4.9c. Kristal oktahedral Pada Gambar 4.9c, terbentuk kristal dengan morfologi oktahedral yang lebih sempurna dibandingkan lainnya, meskipun belum homogen pada permukaan serat *glasswool*. Berdasarkan grafik kristalinitas relatif (Gambar 4.10), kristal zeolit-X yang terbentuk pada Gambar 4.9c memiliki kristalinitas paling tinggi, sehingga fasa zeolit-X yang terbentuk pun lebih kristalin dibandingkan Gambar 4.9a dan 4.9b.

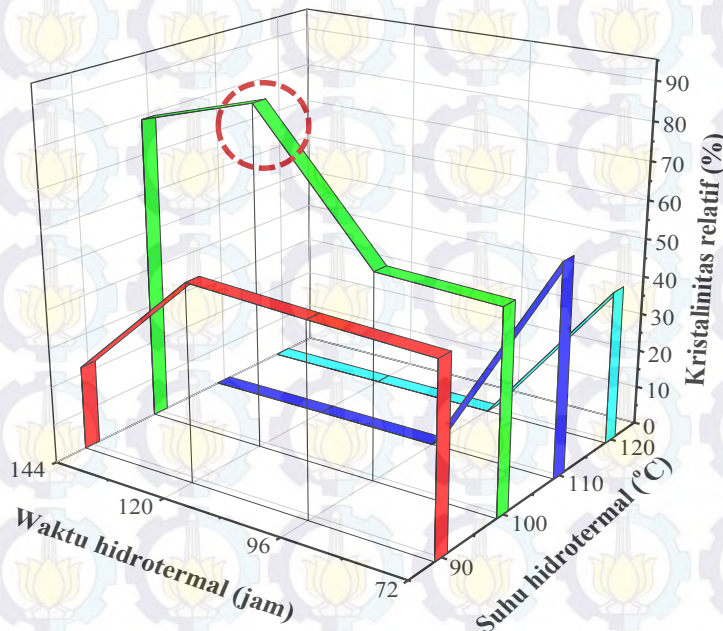


Gambar. 4.9 Morfologi fasa zeolit pada permukaan serat glasswool pada suhu hidrotermal 100°C dengan variasi waktu hidrotermal : (a)72 jam; (b)96 jam; (c) 144 jam



Gambar 4.10 Grafik kristalinitas relatif fasa zeolit pada permukaan serat glasswool pada suhu hidrotermal 100°C dengan variasi waktu hidrotermal, sesuai Gambar 4.9

Plot tiga dimensional kristalinitas relatif pada sampel zeolit-X berpendukung serat dengan variasi waktu hidrotermal dapat dilihat pada Gambar 4.11. Kristalinitas relatif tersebut menkonfirmasi hasil difraktogram XRD pada Gambar 4.7. Sampel zeolit-X berpendukung serat *glasswool* yang memiliki kristalinitas relatif paling tinggi, memerlukan kondisi hidrotermal pada suhu 100°C dan waktu hidrotermal 120 jam. Pada kondisi hidrotermal tersebut, didapatkan kristalinitas relatif sebesar 88,16%.



Gambar 4.11 Plot 3D kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat dengan variasi waktu hidrotermal pada suhu konstan 90°C, 100°C, 110°C dan 120°C

4.2.3 Analisis ANOVA

Analisis ANOVA digunakan untuk menguji apakah terdapat perbedaan signifikan di antara dua parameter yang digunakan dalam penelitian ini terhadap kristalinitas zeolit-X, yaitu suhu dan waktu hidrotermal (Roy, 2001 ; Abrishamkar dkk., 2011 ; Qasim dkk., 2015). Selain itu, melalui analisis ANOVA juga dapat digunakan untuk mengetahui parameter yang lebih berpengaruh diantara suhu dan waktu hidrotermal terhadap kristalinitas zeolit-X berpendukung serat *glasswool*. Di dalam penelitian ini, analisis ANOVA yang digunakan adalah ANOVA dua arah tanpa pengulangan karena terdapat dua faktor yang mempengaruhi keragaman atau varians (Ellison dkk., 2009).

Sebelum melakukan analisis ANOVA, maka data harus memenuhi asumsi ANOVA, yaitu data harus berdistribusi normal serta memiliki ragam atau varians yang homogen (Ellison dkk., 2009 ; Sahai dan Ageel, 2000). Pengujian asumsi tersebut dilakukan dengan uji normalitas menggunakan metode Shapiro-Wilk yang lebih efektif untuk jumlah sampel < 50 (Shapiro dan Wilk, 1965 ; Sahai dan Ageel, 2000) dan uji Bartlett untuk mengetahui homogenitas dari ragam data (Sahai dan Ageel, 2000). Hasil perhitungan pada Lampiran D menandakan bahwa data memiliki distribusi normal dan ragam atau varians homogen pada tingkat signifikansi 5%, sehingga telah memenuhi asumsi pada ANOVA.

Tabel 4.1 merupakan hasil kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat dengan berbagai pasangan variabel suhu dan waktu hidrotermal. Kristalinitas relatif yang bernilai 0,000 % pada sampel ZXF110-96J, ZXF110-120J, ZXF110-144J, ZXF120-96J, ZXF120-120J dan ZXF120-144J, menandakan bahwa fasa zeolit-X telah berubah menjadi sodalit. Data yang didapatkan kemudian diolah menggunakan analisis ANOVA dua arah tanpa replikasi, sehingga didapatkan tabel ANOVA (Tabel 4.2). Hipotesis yang akan diuji adalah :

- H_0 : tidak ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi suhu hidrotermal ; tidak ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi waktu hidrotermal
- H_1 : ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi suhu hidrotermal ; ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi waktu hidrotermal

Perhitungan secara lengkap dari analisis ANOVA dua arah tanpa pengulangan dapat dilihat pada Lampiran D.

Tabel 4.1 Kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat *glasswool*.

Sampel	Kondisi Hidrotermal		kristalinitas Relatif (%)
	Suhu (°C)	Waktu (jam)	
ZXF90-72J	90	72	48,495
ZXF90-96J	90	96	49,696
ZXF90-120J	90	120	51,207
ZXF90-144J	90	144	21,821
ZXF100-72J	100	72	52,334
ZXF100-96J	100	96	53,430
ZXF100-120J	100	120	88,160
ZXF100-144J	100	144	79,045
ZXF110-72J	110	72	55,638
ZXF110-96J	110	96	0,000
ZXF110-120J	110	120	0,000
ZXF110-144J	110	144	0,000
ZXF120-72J	120	72	40,300
ZXF120-96J	120	96	0,000
ZXF120-120J	120	120	0,000
ZXF120-144J	120	144	0,000

Tabel 4.2 Analisis ANOVA dua arah.

Parameter	df	SS	MS	SS'	F _{hitung}	F _{kritis}	P
Suhu	3	8903,442	2967,814	7699,223	7,393	3,862	0,008
Waktu	3	1503,873	501,2911	299,6550	1,248	3,862	0,348
Error	9	3612,654	401,4060				
Total	15	14019,97					

Nilai F hitung pada parameter waktu hidrotermal < F kritis, sehingga H_0 diterima, menunjukkan bahwa perlakuan tidak memberikan efek yang signifikan terhadap kristalinitas relatif. Nilai F hitung pada parameter suhu hidrotermal > F kritis, sehingga H_0 ditolak, maka perlakuan variasi suhu hidrotermal memberikan pengaruh yang lebih signifikan dibandingkan perlakuan variasi waktu hidrotermal. Pada analisis ANOVA tersebut, tingkat kepercayaan yang diinginkan adalah 95% maka tingkat signifikansi adalah sebesar $100-95 = 5\%$ atau 0,05. Oleh karena itu, dalam pengambilan kesimpulan ditetapkan:

(a) *P-value* (variasi suhu hidrotermal) $< 0,05$, maka perlakuan memberikan pengaruh yang signifikan terhadap kristalinitas relatif

(b) *P-value* (variasi waktu hidrotermal) $> 0,05$, maka perlakuan tidak memberikan pengaruh yang signifikan terhadap kristalinitas relatif

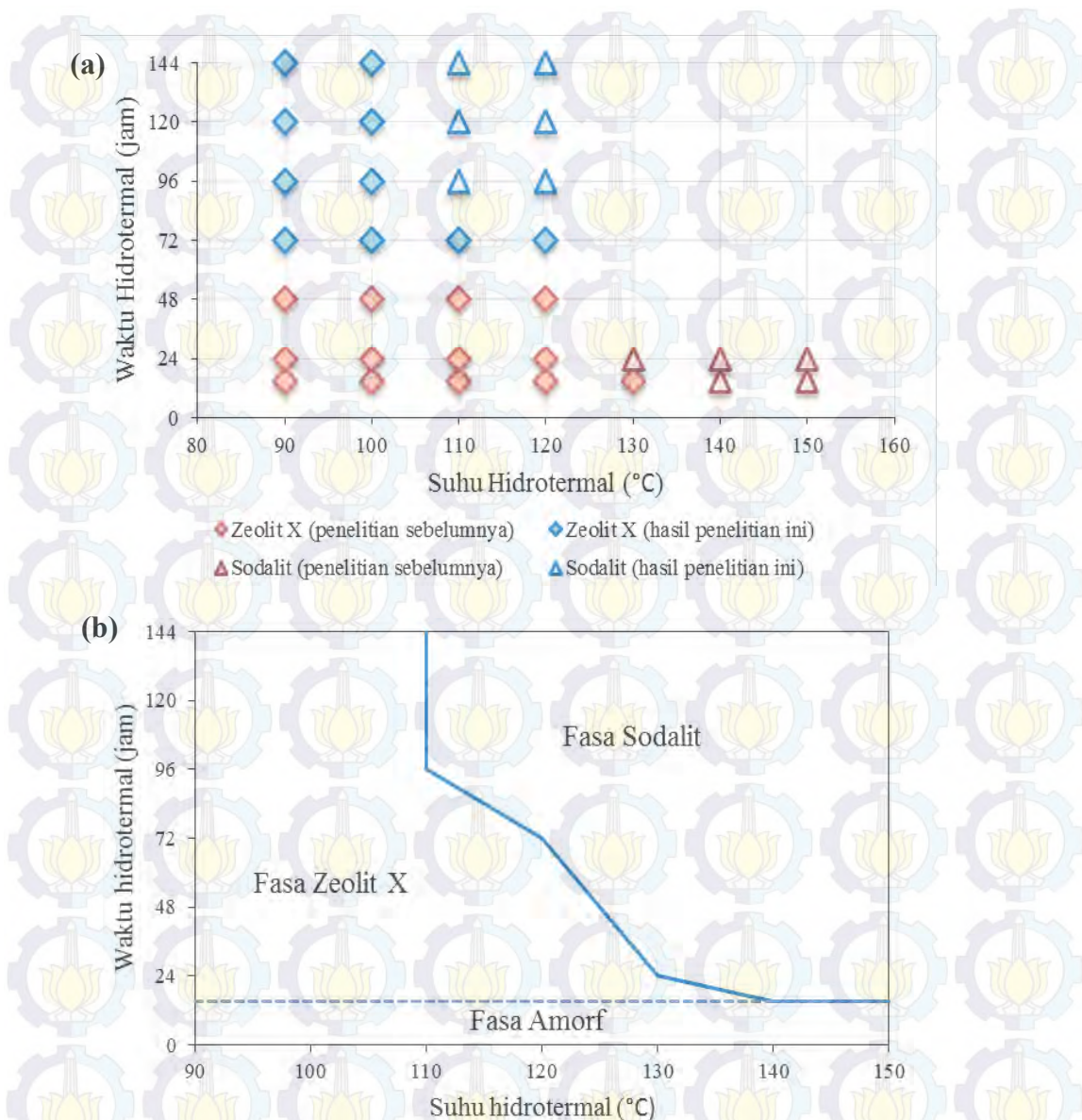
Berdasarkan analisis ANOVA tersebut, maka suhu hidrotermal memberikan pengaruh yang signifikan terhadap kristalinitas relatif zeolit-X berpendukung serat *glasswool*.

4.3 Pemetaan Fasa Zeolit di Atas Permukaan Serat *Glasswool*

Berdasarkan Suhu dan Waktu Hidrotermal

Suhu dan waktu hidrotermal dapat mempengaruhi jenis fasa zeolit yang terbentuk pada permukaan serat *glasswool*. Berdasarkan hasil penelitian sebelumnya (Devianti, 2014 ; Venta, 2015 ; Tyastari, 2015) dan hasil dari penelitian ini, dapat digunakan untuk melakukan pemetaan batas-batas fasa zeolit yang terbentuk akibat suhu dan waktu hidrotermal tertentu. Pemetaan fasa zeolit yang terbentuk pada permukaan serat *glasswool* dapat dilihat pada Gambar 4.12. Dari hasil pemetaan tersebut, dapat ditentukan batas-batas kondisi hidrotermal pada sintesis zeolit berpendukung serat *glasswool* agar didapatkan fasa murni zeolit-X.

Pada suhu 90°C dan 100°C, fasa zeolit-X dapat terbentuk hingga waktu mencapai 144 jam, sedangkan pada suhu 110°C-120°C, fasa zeolit-X hanya terbentuk sampai waktu 72 jam. Pada suhu yang lebih tinggi (130°C), fasa zeolit-X hanya terbentuk pada batas waktu hidrotermal 15 jam. Hal tersebut mengindikasikan bahwa untuk mendapatkan fasa zeolit-X murni dalam sintesis zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dapat dilakukan dengan menggunakan dua garis besar kondisi hidrotermal : (1) dilakukan pada suhu lebih rendah (90°C-100°C) dengan waktu hidrotermal yang relatif lama pada batas 144 jam; (2) dilakukan pada suhu lebih tinggi (110°C-130°C) dengan waktu hidrotermal yang relatif lebih cepat pada batas 15 jam – 72 jam. Selain itu, untuk memperoleh fasa zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dengan kristalinitas tertinggi, maka kondisi hidrotermal yang diperlukan adalah pada suhu 100°C selama 120 jam.



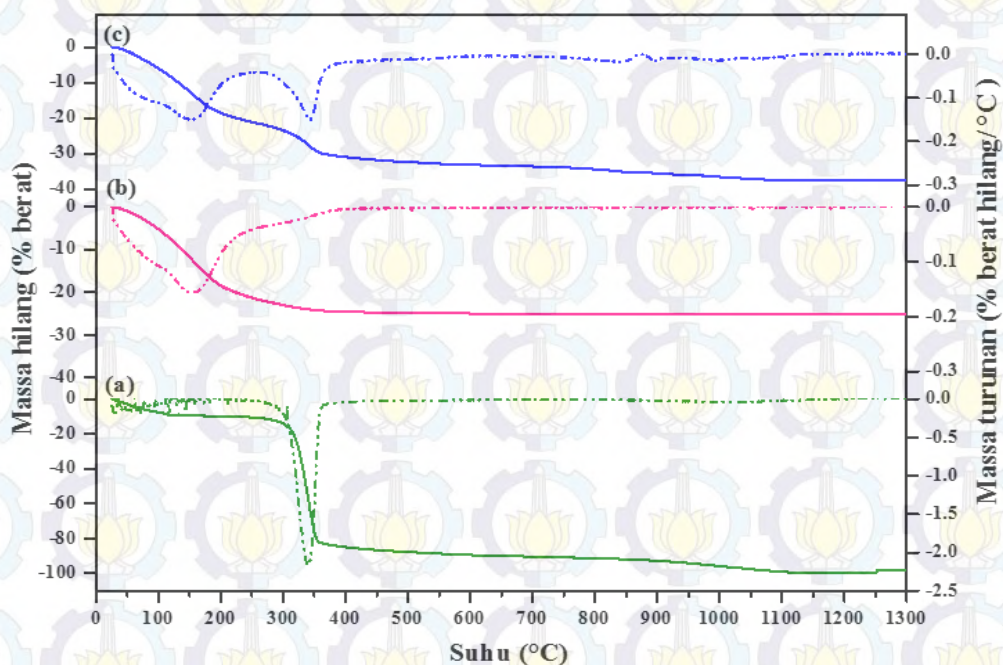
Gambar 4.12 (a) Pemetaan fasa zeolit dan (b) diagram fasa zeolit pada suhu hidrotermal 90°C - 150°C dan waktu hidrotermal 15 jam – 144 jam berdasarkan penelitian sebelumnya (Devianti, 2014 ; Venta, 2015 ; Tyastari, 2015) dan hasil dari penelitian ini

4.4 Analisis Termal Zeolit-X Berpendukung *Glasswool*

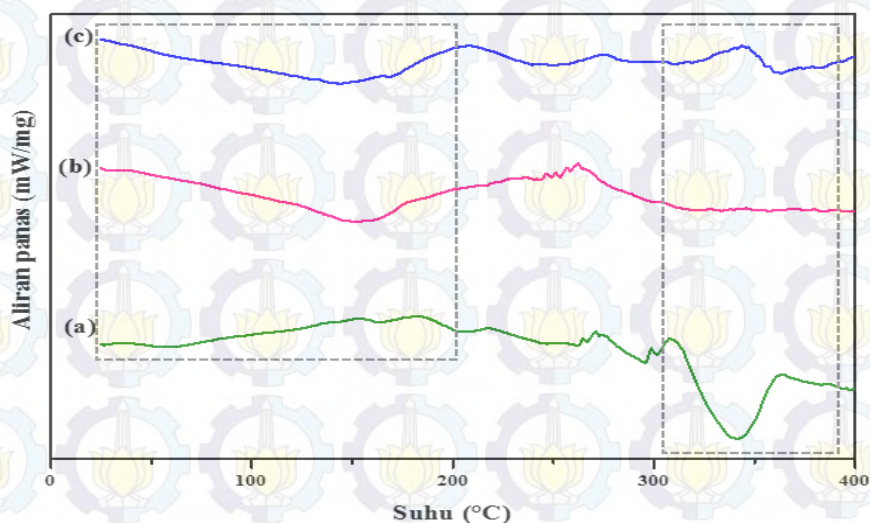
Material zeolit-X berpendukung serat *glasswool* yang memiliki kristalinitas tertinggi (ZXF100-120J) diuji menggunakan instrumental TGA-DSC untuk menentukan karakteristik perubahan sifat fisika terhadap fungsi perubahan suhu. Perbandingan karakteristik termal dari serat *glasswool*, zeolit-X (ZX) dan zeolit-X

berpendukung serat *glasswool* (ZXF100-120J) dapat dilihat pada termogram TG-DTG pada Gambar 4.13 dan termogram DSC pada Gambar 4.14.

Termogram TG dari ZXF100-120J (Gambar 4.13 c) memperlihatkan massa yang hilang sebesar 19% berat pada suhu 50°C-250°C, dibuktikan dengan munculnya puncak pada termogram DTG di kisaran suhu tersebut. Hilangnya massa pada suhu 50°C-250°C, juga terjadi pada termogram TG-DTG zeolit-X (Gambar 4.13 b) sebagai pembanding, sebesar 24% berat. Menurut penelitian Joshi dkk. (2002) dan Musyoka dkk. (2013), zeolit-X memiliki sifat hidrofilisitas yang besar akibat interaksi kuat antara kation Na^+ pada kerangka zeolit dan pasangan elektron bebas pada H_2O . Pada kisaran suhu tersebut, interaksi antara kation zeolit-X dan oksigen dari H_2O akan terputus dan menyebabkan berkurangnya massa material (Joshi dkk., 2002 ; Lee dkk., 2007 ; Musyoka dkk., 2013). Hasil tersebut diperkuat dengan termogram DSC material ZX (Gambar 4.14 b). Puncak endotermis yang melebar muncul pada kisaran suhu 50°C-250°C, sedangkan pada termogram DSC material ZXF100-120J (Gambar 4.14 c), muncul puncak endotermis pada kisaran suhu 50°C-210°C.



Gambar 4.13 Kurva TG(—) dan DTG (----) dari (a) serat *glasswool* ; (b) zeolit X ; (c) zeolit-X berpendukung *glasswool* (ZXF100-120J).



Gambar 4.14 Kurva DSC dari (a) serat *glasswool* ; (b) zeolit-X ; (c) zeolit-X berpendukung *glasswool* (ZXF100-120J).

Pada kisaran suhu 300°C-400°C, muncul puncak dalam termogram DTG material ZXF100-120J (Gambar 4.13 c) dan serat *glasswool* (Gambar 4.13 a) yang merupakan indikasi bahwa serat *glasswool* sebagai material pendukung ZXF100-120J telah mengalami dekomposisi. Pada termogram DSC (Gambar 4.14 a dan c) juga muncul puncak endotermis di kisaran suhu 300°C-400°C. Hasil tersebut sesuai dengan penelitian Tittareli dkk. (2013) yang menyebutkan bahwa pada kisaran suhu 300°C-600°C, hampir sebagian besar komponen pengikat organik dan komponen anorganik dalam *glasswool* telah terdekomposisi. Massa ZXF100-120J dan serat *glasswool* yang berkurang akibat dekomposisi material organik secara berturut-turut adalah 19% berat dan 72% berat.

Nilai entalpi dari puncak-puncak endotermis tersebut dapat dihitung melalui integrasi luas area puncak pada termogram DSC (Lampiran F) untuk mempelajari stabilitas termal material (Joshi dkk., 2002). Hasil analisa termal termogram DSC dari Tabel 4.3 menunjukkan bahwa nilai entalpi saat terjadi desorpsi air (ΔH_{endo}) material ZX lebih besar dibandingkan dengan material ZXF, sehingga material ZX membutuhkan panas yang lebih tinggi untuk melepas air yang terikat secara fisik baik di permukaan maupun di dalam kerangka zeolit-X (Joshi dkk., 2002 ; Wu dkk., 2012). Hal tersebut menunjukkan bahwa material ZX lebih stabil secara termodinamika dibandingkan material ZXF. Sebaliknya, material ZXF justru lebih menguntungkan jika diaplikasikan sebagai adsorben dalam teknologi CCS (CO_2

Capture and Storage) karena membutuhkan panas yang lebih sedikit untuk melepaskan kandungan air di dalam material. Berdasarkan hasil analisa dari termogram TG-DTG menunjukkan bahwa material zeolit-X berpendukung serat *glasswool* (ZXF100-120J) memiliki stabilitas termal hingga suhu 300°C karena material pendukung serat di dalam ZXF mulai terdekomposisi pada suhu di atas 300°C dan membutuhkan entalpi sebesar 0,84 kJ/g.

Tabel 4.3 Analisa termal data termogram DSC

Material	Kisaran suhu (°C)	Suhu puncak endotermis (°C)	ΔH_{endo} (kJ/g)
Zeolit-X (ZX)	50-250	148,8	7,38
	340-400	-	-
Zeolit-X/serat <i>glasswool</i> (ZXF100-120J)	50-210	142,7	3,08
	310-400	362,2	0,84

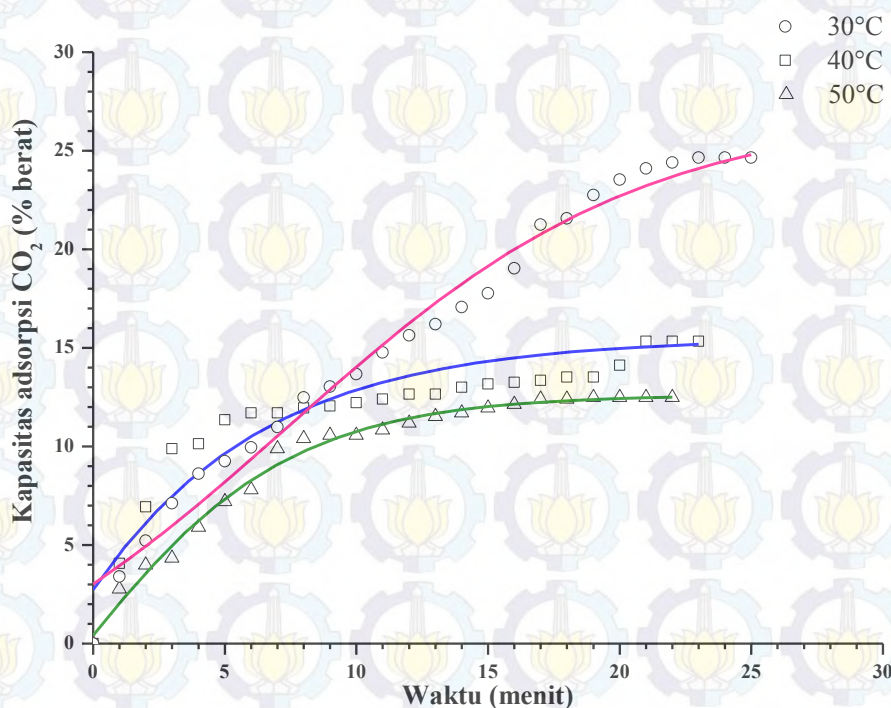
4.5 Pengujian Kapasitas Adsorpsi-Desorpsi CO₂ pada Zeolit-X Berpendukung Serat *Glasswool*

Material zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dengan kristalinitas tertinggi (ZXF100-120J) diuji kapasitas adsorpsi-desorpsi CO₂ menggunakan metode gravimetri. Suhu adsorpsi-desorpsi yang digunakan adalah 30°C, 40°C dan 50°C pada tekanan 1 bar.

Sebelum dilakukan pengujian kapasitas adsorpsi-desorpsi gas CO₂, ZXF100-120J dipanaskan pada suhu 105°C selama 3 jam untuk menghilangkan kandungan air yang terikat secara fisik di permukaan material (Devianti, 2014). Setelah itu, proses *degassing* dilakukan pada kisaran suhu 300°C - 400°C untuk menghilangkan gas pengotor maupun uap air pada zeolit (Figini-Albisetti, 2010 ; Zukal dkk., 2011). Selain itu, suhu proses *degassing* juga harus dipertimbangkan agar tidak merusak struktur material karena dilakukan pada suhu relatif tinggi. Oleh karena itu, hasil analisa karakteristik termal ZXF100-120J dapat digunakan untuk menentukan suhu proses *degassing* (Figini-Albisetti, 2010). Sesuai dengan hasil analisa TGA-DSC pada sub bab 4.4, material ZXF100-120J memiliki stabilitas termal pada batas suhu 300°C dan mulai mengalami dekomposisi material pendukung di atas suhu tersebut, sehingga suhu *degass* yang dipilih di dalam penelitian ini adalah 300°C.

4.5.1 Adsorpsi CO₂ pada Zeolit-X Berpendukung Serat *Glasswool*

Hasil uji kapasitas adsorpsi CO₂ dengan metode gravimetri pada material ZXF100-120J dikonversi terlebih dahulu menjadi persentase berat (% berat), kemudian di plot terhadap waktu dalam satuan menit. Berdasarkan grafik adsorpsi CO₂ di Gambar 4.15, peningkatan berat dari material ZXF100-120J pada variasi suhu 30°C, 40°C maupun 50°C terus terjadi hingga menit ke-19. Pada menit ke-20, berat material yang terukur mulai mencapai konstan karena telah mencapai kondisi jenuh, sehingga material sudah tidak mampu lagi mengadsorpsi gas CO₂ yang mengalir ke dalam sistem.



Gambar 4.15 Grafik adsorpsi CO₂ pada material ZXF100-120J (tekanan 1 bar)

Material ZXF100-120J memiliki kapasitas adsorpsi sebesar 24,5% berat pada suhu 30°C, kemudian menurun seiring dengan bertambahnya suhu, yaitu 15,3% berat pada suhu 40°C dan 12,5% berat pada suhu 50°C. Penurunan kapasitas adsorpsi CO₂ pada beberapa material zeolit-X akibat kenaikan suhu telah banyak dilaporkan oleh penelitian sebelumnya seperti tertera pada Tabel 4.5. Pada suhu relatif tinggi, interaksi adsorbat-adsorben akan semakin berkurang karena mobilitas dari molekul CO₂ yang bergerak semakin cepat. Ketika molekul CO₂ tersebut teradsorpsi ke dalam material ZXF100-120J, molekul CO₂ cenderung terus

bergerak di dalam pori zeolit, sehingga merusak interaksi antara sisi adsorben-adsorbat dan molekul CO₂ dapat lepas kembali (Khelifa dkk., 2004 ; Bonenfant dkk., 2008).

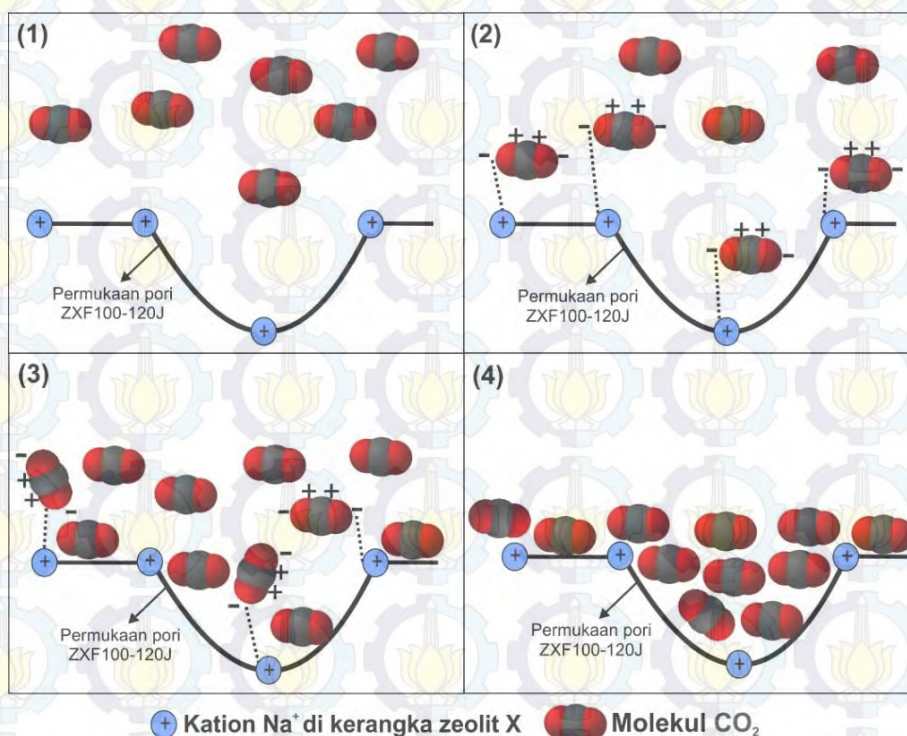
Tabel 4.5 Hasil adsorpsi CO₂ pada variasi suhu dan tekanan 1 bar

Material	Suhu (°C)	Kapasitas adsorpsi CO ₂ (% berat)	Pustaka
ZeolitX/serat <i>glasswool</i> (ZXF100-120J)	30	24,5	Hasil penelitian ini
	40	15,3	
	50	12,5	
ZeolitX/serat <i>glasswool</i> (ZXF100-24J)	30	10,5	(Tyastari, 2015 dan Venta, 2015)
	40	8,7	
	50	7,6	
Zeolit-X murni	25	30,5	(Akhtar dan Bergstorm, 2011 ; Akhtar dkk., 2012)
	35	22,2	
Zeolit-X-karbon aktif	20	15,7	(Lee dkk., 2002)
	40	12,9	
	60	10,8	

Penyebab lain menurunnya kapasitas adsorpsi CO₂ pada suhu tinggi dapat dijelaskan juga berdasarkan sudut pandang termodinamika. Studi termodinamika terhadap adsorpsi CO₂ pada material zeolit-X murni telah dilakukan pada penelitian sebelumnya dengan menggunakan variasi suhu adsorpsi (Deng dkk., 2012 ; Zhang dkk., 2014). Berdasarkan hasil penelitian tersebut, adsorpsi CO₂ ke dalam material zeolit-X memiliki nilai energi bebas gibbs (ΔG°) yang lebih negatif pada suhu ruang, sehingga adsorpsi CO₂ akan berlangsung spontan pada suhu yang lebih rendah. Selain itu, proses adsorpsi CO₂ bersifat eksotermis, ditunjukkan oleh entalpi adsorpsi yang juga bernilai negatif (ΔH°). Hasil pengujian kapasitas adsorpsi CO₂ dengan variasi suhu yang didapatkan dari penelitian ini, diasumsikan telah mengikuti hasil studi termodinamika adsorpsi CO₂ yang dilaporkan oleh Deng dkk. (2012) dan Zhang dkk. (2014). Bukti dari asumsi tersebut diperkuat oleh subbab 4.7 yang khusus membahas aspek termodinamika adsorpsi CO₂ terhadap material ZXF100-120J.

Material ZXF100-120J memiliki kapasitas adsorpsi CO₂ yang relatif besar pada suhu 30°C jika dibandingkan dengan material ZXF pada penelitian sebelumnya, yaitu 24,5 % berat (Tabel 4.5). Kapasitas adsorpsi yang relatif besar pada suhu ruang tersebut, diduga mengikuti mengikuti proses fisisorpsi dan

dibuktikan pula oleh nilai entalpi adsorpsi (ΔH°) yang sangat kecil (< 80 kJ/mol) pada subbab 4.7. Selain itu, adanya momen kuadrupol pada molekul CO_2 akan menyebabkan sisi atom oksigen berinteraksi secara kuat dengan kation Na^+ di dalam kerangka zeolit-X proses adsorpsi gas CO_2 ke dalam adsorben (ZXF100-120J). Proses adsorpsi CO_2 ke dalam material ZXF100-120J diilustrasikan pada Gambar 4.16 (Deng dkk., 2012 dan Shao dkk., 2009).



Gambar 4.16 Ilustrasi proses adsorpsi CO_2 dari material ZXF100-120J

Dugaan lain yang menyebabkan material ZXF100-120J memiliki kapasitas adsorpsi CO_2 sangat tinggi dibandingkan dengan penelitian yang telah dilakukan oleh Devianti (2014), Tyastari (2015) dan Venta (2015) adalah kristalinitas dari fasa zeolit-X di permukaan serat *glasswool*. Material ZXF100-120J memiliki kristalinitas relatif yang paling tinggi baik di dalam penelitian ini maupun penelitian-penelitian sebelumnya. Hasil perbandingan kristalinitas relatif material ZXF dari penelitian sebelumnya terhadap material ZXF100-120J beserta kapasitas adsorpsi CO_2 dapat dilihat pada Tabel 4.6. Hasil perhitungan kristalinitas relatif pada Tabel 4.6, menguatkan dugaan bahwa material ZXF100-120J dapat memiliki kapasitas adsorpsi CO_2 paling tinggi karena memiliki kristalinitas relatif paling

tinggi pula. Hal itu dibuktikan dengan mikrofot SEM pada Gambar 4.5 serta grafik kristalinitas 3D pada Gambar 4.7 dan 4.10.

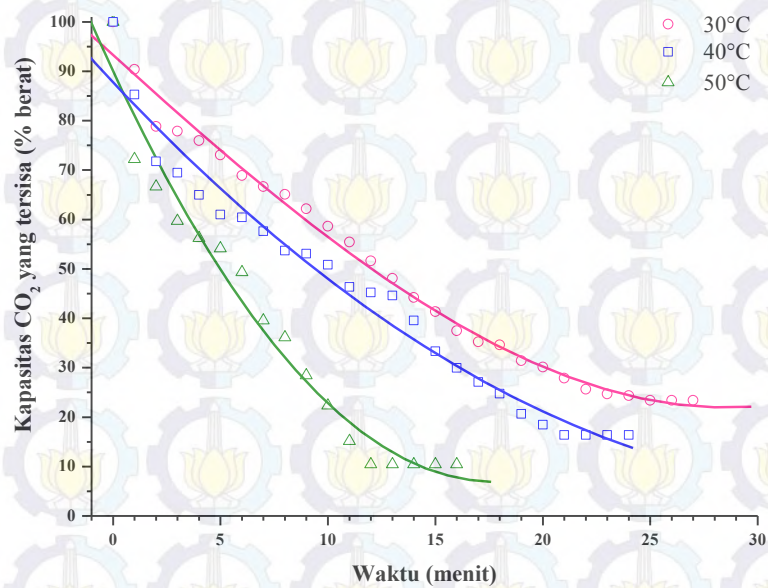
Tabel 4.6 Hubungan antara kristalinitas relatif dan kapasitas adsorpsi CO₂

Material ZXF	Kristalinitas relatif (%)	Kapasitas adsorpsi CO ₂ (% berat)	Pustaka
ZXF100-120J	100,00	24,5	Penelitian ini
ZXF100-24J	60,76	10,5	(Tyastari, 2015 ; Venta, 2015)
ZXF110-24J	59,40	4,9	(Devianti, 2014)
ZXF110-15J	54,86	2,8	(Devianti, 2014)

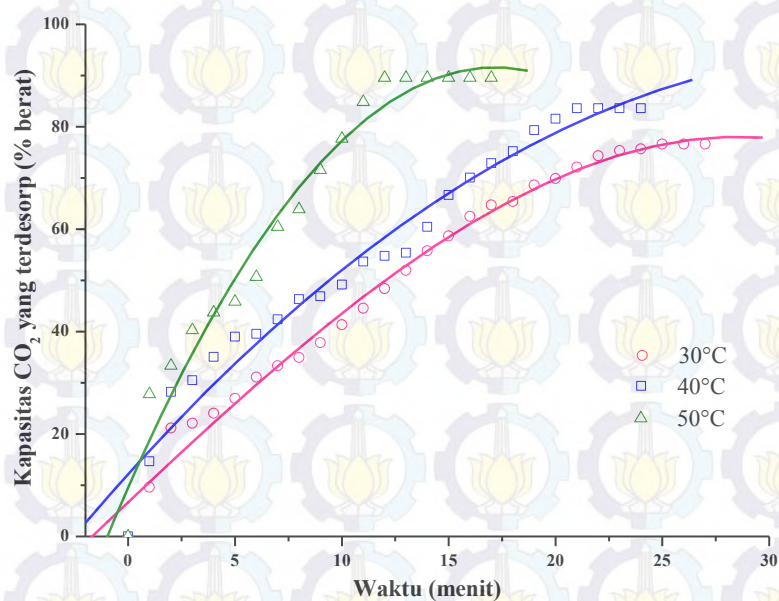
4.5.2 Desorpsi CO₂ pada Zeolit-X Berpendukung Serat *Glasswool*

Kemampuan regenerasi material adsorben di dalam teknologi CCS (*CO₂ Capture and Storage*) sangat dipertimbangkan agar dapat digunakan kembali tanpa membuang adsorben tersebut. Hauchhum dan Mahanta (2014) melaporkan bahwa adsorben zeolit-X dapat digunakan kembali untuk adsorpsi gas CO₂ hingga 5 kali regenerasi setelah proses desorpsi. Gas CO₂ yang telah terdesorpsi dapat digunakan untuk keperluan lain seperti isi ulang gas CO₂ komersial atau pemanfaatan gas CO₂ untuk penelitian seperti Barton dkk. (2010) yang berhasil mereduksi CO₂ menjadi bahan bakar metanol atau Hamelers (2013) yang berhasil memanfaatkan CO₂ menjadi energi listrik.

Beberapa uraian tersebut mengindikasikan bahwa uji desorpsi digunakan untuk mengetahui % berat CO₂ yang dapat terdesorpsi dari material ZXF100-120J pada suhu 30°C, 40°C dan 50°C. Metode yang digunakan adalah gravimetri dengan mengamati penurunan massa yang terjadi setelah kesetimbangan adsorpsi tercapai. Hasil pengujian desorpsi pada ketiga suhu yang digunakan tertera pada Gambar 4.17 dan 4.18.



Gambar 4.17 Grafik kapasitas CO₂ yang tersisa pada material ZXF100-120J

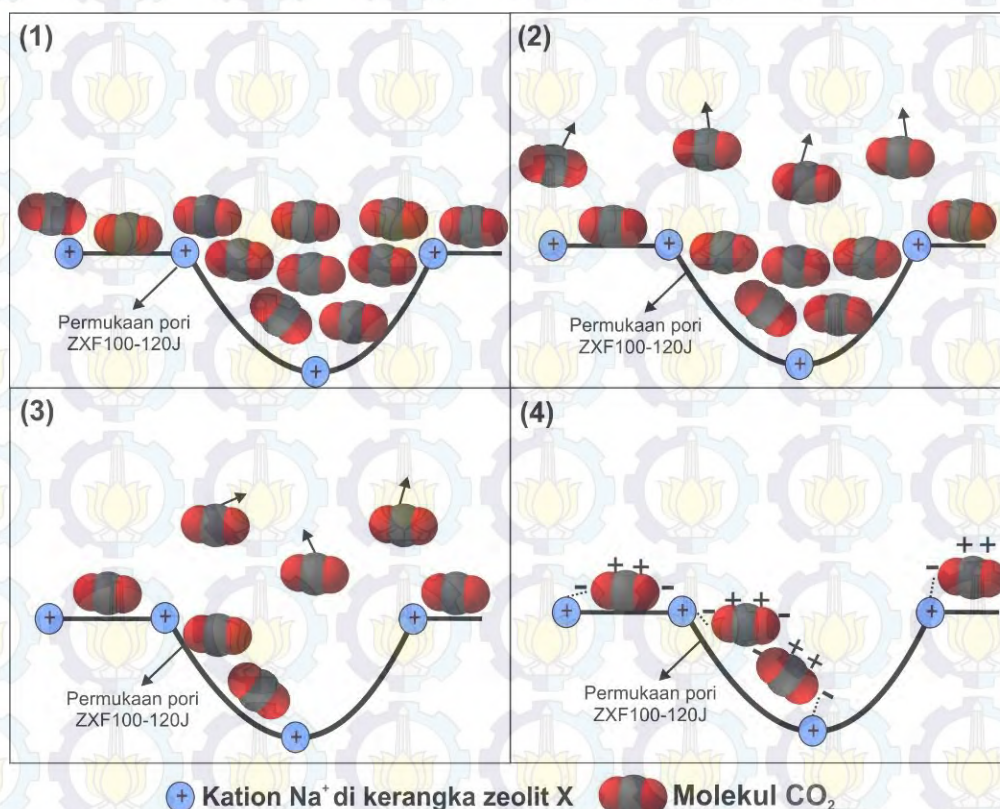


Gambar 4.18 Grafik kapasitas CO₂ yang terdesorp pada material ZXF100-120J

Tabel 4.7 Hasil desorpsi CO₂ pada variasi suhu dan tekanan 1 bar

Material	Suhu (°C)	Kapasitas desorpsi CO ₂ (%berat)	Sisa CO ₂ (%berat)	Waktu (menit)	Pustaka
ZXF100-120J	30	76,6	23,4	24	Penelitian ini
	40	83,6	16,4	18	
	50	89,5	10,5	12	
Zeolit-X murni	70	90	10	5	(Silva dkk., 2012)
	100	99	1,0	2,5	

Pola desorpsi gas CO₂ pada ketiga suhu memiliki kecenderungan semakin menurun dengan bertambahnya waktu. Berdasarkan hasil di Tabel 4.7, jumlah gas CO₂ yang terdesorpsi semakin tinggi dengan bertambahnya suhu. Bahkan, pada penelitian lain (Tabel 4.7) yang menggunakan suhu desorpsi hingga 100°C, kapasitas CO₂ yang terdesorpsi mencapai 99% dengan waktu yang sangat cepat, yaitu 2,5 menit. Hal ini disebabkan oleh gaya *Van der Waals* yang semakin lemah pada suhu tinggi, terutama pada lapisan *multilayer*, sehingga molekul CO₂ akan mudah terlepas. Selain itu, kenaikan suhu akan meningkatkan energi dalam dari gas CO₂ dan menyebabkan molekul gas semakin cepat lepas dari permukaan material ZXF100-120J. Molekul poliatomik CO₂ yang linier memiliki mode translasi dan dua mode rotasi yang berkontribusi terhadap energi dalam. Ketika suhu sistem dinaikkan, maka semua mode gerakan dalam molekul akan bergerak lebih cepat lagi dan menyebabkan energi dalam meningkat (Atkins dan de Paula, 2006 ; Hauchhum dan Manhata, 2014).



Gambar 4.19 Ilustrasi proses desorpsi CO₂ dari material ZXF100-120J

Ilustrasi proses desorpsi CO₂ dari material ZXF100-120J dapat dilihat pada Gambar 4.19. Proses desorpsi diawali dengan lepasnya gas CO₂ pada lapisan multilayer, kemudian pada lapisan monolayer. Gas CO₂ yang masih tertinggal di dalam material ZXF100-120J seperti yang ditunjukkan oleh Gambar 4.18, diakibatkan oleh interaksi kuat dengan kation Na⁺ di dalam kerangka zeolit-X.

Hasil yang didapatkan dari proses desorpsi CO₂ dari material ZXF100-120J yang hampir mencapai 90% pada suhu 50°C, menandakan bahwa proses adsorpsi CO₂ berjalan reversibel mengikuti proses fisisorpsi. Adanya gas CO₂ yang masih tersisa di dalam material ZXF100-120J diakibatkan oleh interaksi yang masih terjadi di antara kation Na⁺ dan momen kuadropol dari CO₂ pada lapisan *monolayer*. Untuk menghilangkan gas CO₂ dari adsorben hingga 99%, dibutuhkan suhu desorpsi yang tinggi, yaitu di atas 100°C (Hauchhum dan Manhata, 2014 ; Silva dkk., 2012).

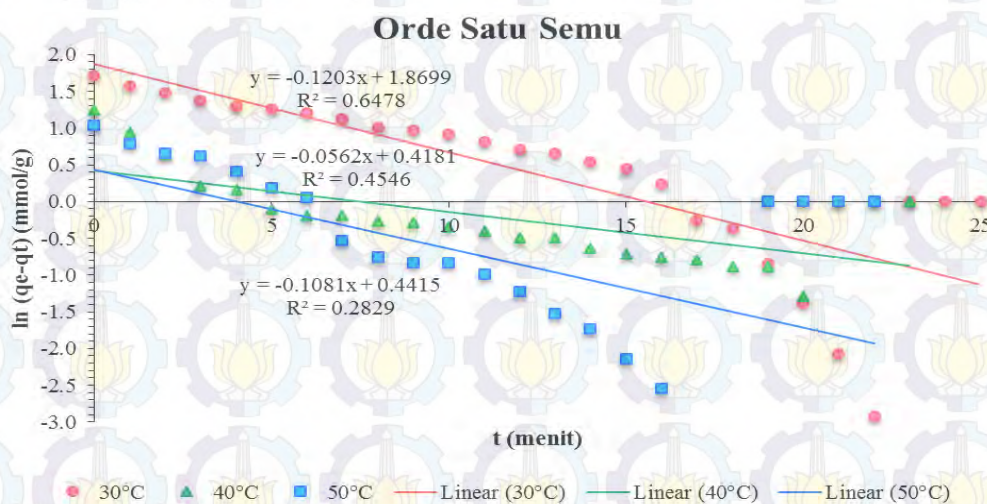
4.6 Model Kinetika Adsorpsi

Penentuan model kinetika adsorpsi digunakan untuk menjelaskan mekanisme adsorpsi CO₂ yang terjadi pada material ZXF100-120J. Prediksi terhadap model kinetika adsorpsi juga sangat dibutuhkan untuk simulasi dan perencanaan unit pemisahan gas CO₂ dari udara karena dapat mempelajari laju adsorpsi serta sifat fisika dan kimia dari adsorben (Liu dkk., 2014 ; Shafeeyan dkk., 2015).

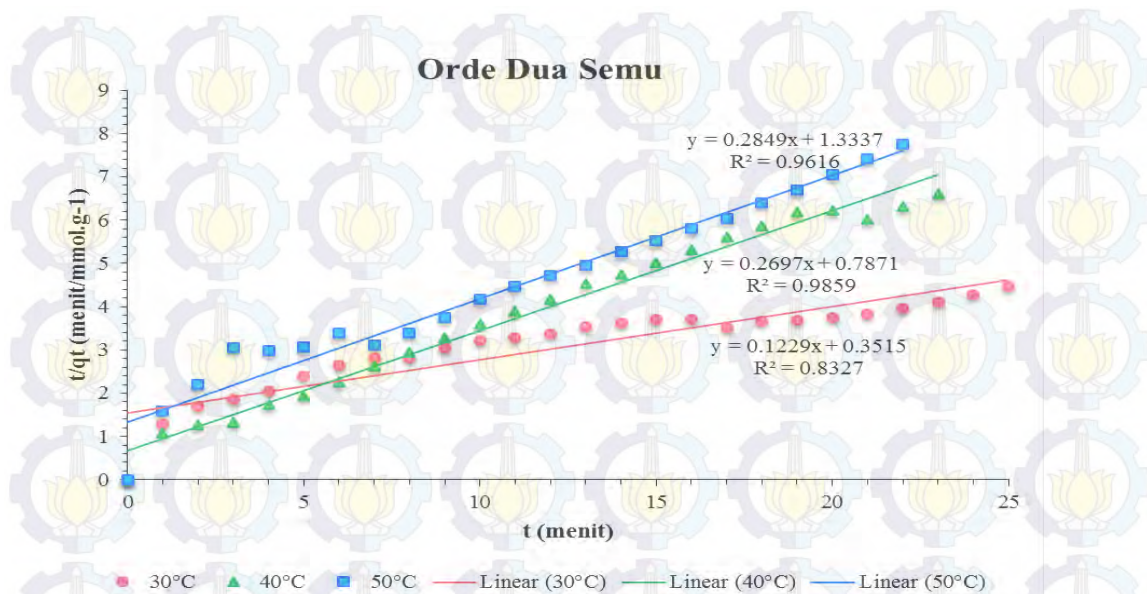
Pada penelitian ini, data hasil adsorpsi dianalisa menggunakan tiga model kinetika adsorpsi yaitu model kinetika orde satu semu (Guererro dkk., 2010), orde dua semu (Rashidi dkk., 2013) dan difusi intra partikel (Rashidi dkk., 2013 ; Widiastuti dkk., 2011). Hasil perhitungan ketiga model kinetika adsorpsi ditunjukkan pada Gambar 4.20, 4.21 dan 4.22, sedangkan nilai parameter adsorpsi kinetika dari ketiga model kinetika dapat dilihat dalam Tabel 4.8. Berdasarkan nilai koefisien korelasi (R^2), adsorpsi gas CO₂ ke dalam material ZXF100-120J mengikuti model kinetika difusi intra partikel pada suhu 30°C. Saat suhu adsorpsi ditingkatkan menjadi 40°C dan 50°C, laju adsorpsi gas CO₂ mengikuti model kinetika orde dua semu.

Tabel 4.8 Parameter Kinetika Adsorpsi CO₂ dengan Berbagai Model

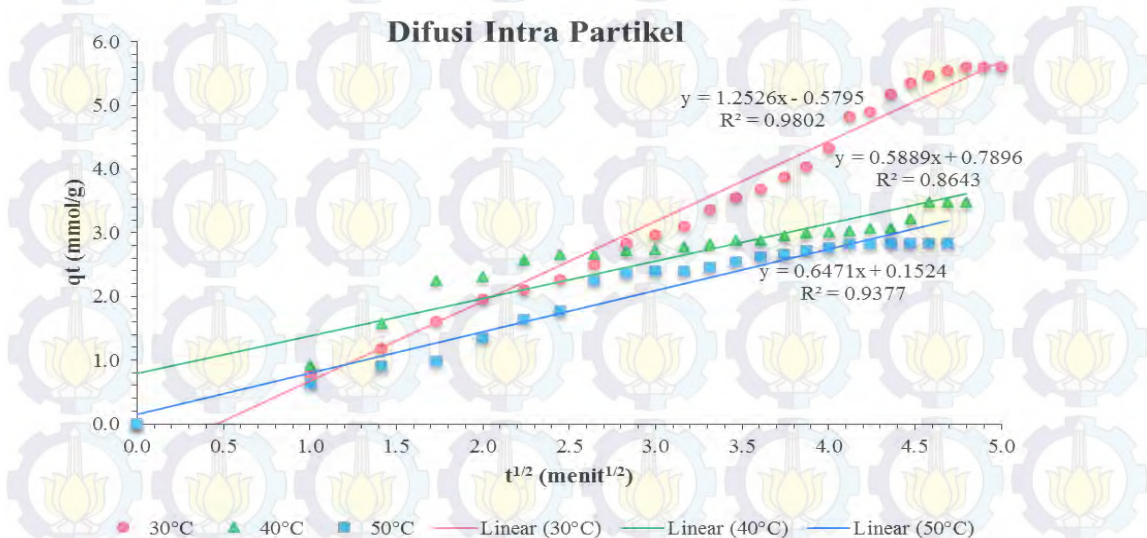
Model kinetika	Parameter			
Orde satu semu	k_f (menit ⁻¹)		q_e (mmol/g)	R^2
30°C	0,1203		6,4876	0,6478
40°C	0,0562		1,5190	0,4546
50°C	0,1081		1,5550	0,2829
Orde dua semu	k_s (g/mmol menit)	h (mmol/g menit)	q_e (mmol/g)	R^2
30°C	0,0429	2,8448	8,1366	0,8327
40°C	0,0917	1,2606	3,7078	0,9859
50°C	0,0609	0,7503	3,5100	0,9616
Difusi intra partikel	k_{id} (mmol/g menit ^{1/2})		C	R^2
30°C	1,2526		0,5795	0,9802
40°C	0,5889		0,7896	0,8643
50°C	0,6471		0,1524	0,9377
Keterangan :				
k_f : Konstanta laju orde satu semu				
q_e : Kapasitas adsorpsi pada saat kesetimbangan				
h : Laju penyerapan awal				
k_s : Konstanta laju orde dua semu				
k_{id} : Konstanta laju difusi intrapartikel				
C : Ketebalan batas lapisan				



Gambar 4.20 Plot model kinetika orde satu semu pada variasi suhu adsorpsi



Gambar 4.21 Plot model kinetika orde dua semu pada variasi suhu adsorpsi



Gambar 4.22 Plot model kinetika difusi intra partikel pada variasi suhu adsorpsi

Model difusi intra partikel mengindikasikan proses adsorpsi CO₂ ke dalam pori ZXF100-120J pada suhu 30°C berlangsung dalam dua tahap, yaitu tahap difusi makropori dan tahap difusi mikropori. Pada tahap difusi makropori, gas CO₂ teradsorp pada permukaan luar ZXF100-120J, sedangkan pada tahap difusi mikropori, molekul gas CO₂ akan teradsorp pada permukaan dalam material (Rashidi dkk., 2013 ; Widiastuti dkk., 2011). Konstanta laju difusi intra partikel dari adsorpsi CO₂ pada suhu 30°C sebesar 1,2526 mmol/g menit^{1/2}.

Model kinetika orde dua semu yang sesuai dengan laju adsorpsi CO₂ pada suhu 40°C dan 50°C, menunjukkan bahwa kapasitas adsorpsi selalu proporsional dengan banyaknya sisi aktif yang dimiliki oleh adsorben (Liu dkk., 2014 ; Rashidi dkk., 2013). Laju penyerapan CO₂ awal (*h*) berdasarkan model kinetika orde dua semu cenderung menurun dengan meningkatnya suhu (Tabel 4.8). Hal tersebut membuktikan bahwa proses adsorpsi CO₂ ke dalam material ZXF100-120J termasuk proses fisisorpsi dan memiliki sifat eksotermis, yang selanjutnya juga dikonfirmasi oleh hasil entalpi (ΔH) dan energi bebas Gibbs (ΔG) pada subbab 4.7.

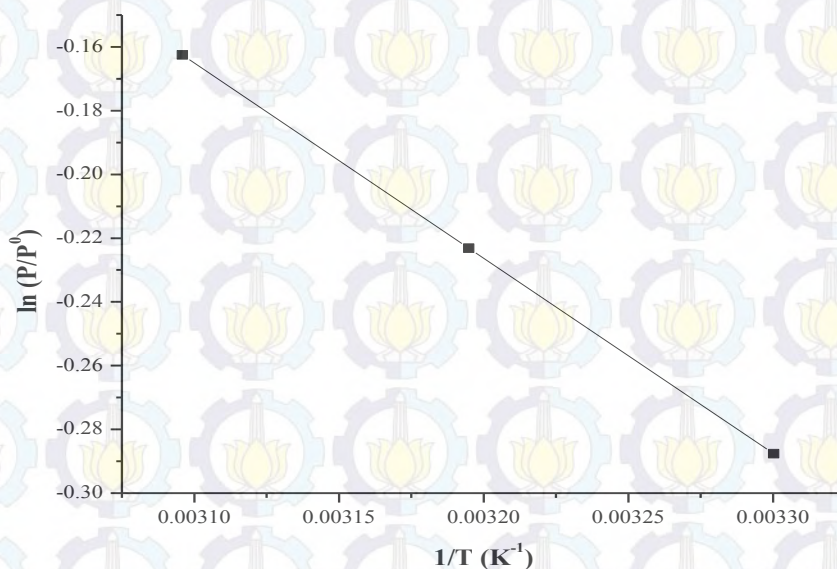
Hasil pemodelan laju adsorpsi CO₂ dengan ketiga model kinetika, juga dapat digunakan untuk mengetahui jumlah energi minimum atau energi aktivasi (E_a) yang dibutuhkan saat proses adsorpsi. Energi aktivasi saat adsorpsi dihitung menggunakan persamaan Arrhenius (Liu dkk., 2014 ; Rashidi dkk., 2013 ; Shafeeyan dkk., 2015). Konstanta laju yang digunakan adalah konstanta laju orde dua semu (k_s) karena memiliki nilai koefisien korelasi yang paling tinggi yaitu antara 0,8327 – 0,9859. Selanjutnya, hasil plot antara $\ln k_s$ dan $1/T$ akan menghasilkan sebuah garis dengan *slope* ($-E_a/R$), R merupakan konstanta gas (8,314 J/mol) (Lampiran J). Nilai E_a yang didapatkan dari hasil penelitian ini sebesar 14,8 kJ/mol, lebih rendah dari nilai E_a untuk proses kemisorpsi (E_a kemisorpsi = 40-50 kJ/mol).

Hasil perhitungan nilai E_a tersebut semakin menguatkan bukti bahwa proses adsorpsi CO₂ pada material ZXF100-120J termasuk jenis fisisorpsi. Di dalam proses fisisorpsi, nilai E_a akan cenderung rendah karena interaksi yang lemah antara adsorbat-adsorben. Kisaran nilai E_a yang sama (< 40 kJ/mol) juga didapatkan di dalam penelitian Liu dkk. (2014) untuk adsorpsi CO₂ pada karbon *nanotube* dan Rashidi dkk. (2013) untuk adsorpsi CO₂ ke dalam karbon aktif, berturut-turut sebesar 13,2 kJ/mol dan 17 kJ/mol. Kedua penelitian tersebut juga menyimpulkan bahwa proses adsorpsi yang berlangsung merupakan jenis adsorpsi fisika atau fisisorpsi.

4.7 Studi Termodinamika Adsorpsi

Parameter termodinamika adsorpsi gas CO₂ pada material ZXF100-120J dapat ditentukan melalui nilai entalpi adsorpsi (ΔH), entropi adsorpsi (ΔS) dan

energi bebas adsorpsi (ΔG) (Deng dkk., 2012; Zhang dkk., 2014). Harga entalpi dapat ditentukan dengan cara melakukan adsorpsi pada beberapa variasi suhu melalui persamaan van't Hoff pada persamaan 2.18. Harga ΔH , ΔS dan ΔG diperoleh dari perhitungan slope dan intersep kurva linier antara $1/T$ pada sumbu x dan $\ln P/P^0$ pada sumbu y, serta melalui Persamaan 2.19 (Lampiran K).



Gambar 4.23 Grafik plot $\ln(P/P^0)$ terhadap $1/T$

Tabel 4.9 Parameter termodinamika adsorpsi CO_2 pada ZXF100-120J

Suhu	P _{eq} (bar)	P ^o (bar)	ΔH (kJ/mol)	ΔS (kJ/mol)	ΔG (kJ/mol)
30°C	0,750	1	-5,092	-0,0144	-0,725
40°C	0,800	1			-0,581
50°C	0,850	1			-0,283
P _{eq} = Tekanan saat setimbang (bar)					
P ^o = Tekanan mutlak (bar)					
ΔS = Perubahan Entropi					
ΔH = Perubahan entalpi					
ΔG = Perubahan energi bebas Gibbs					

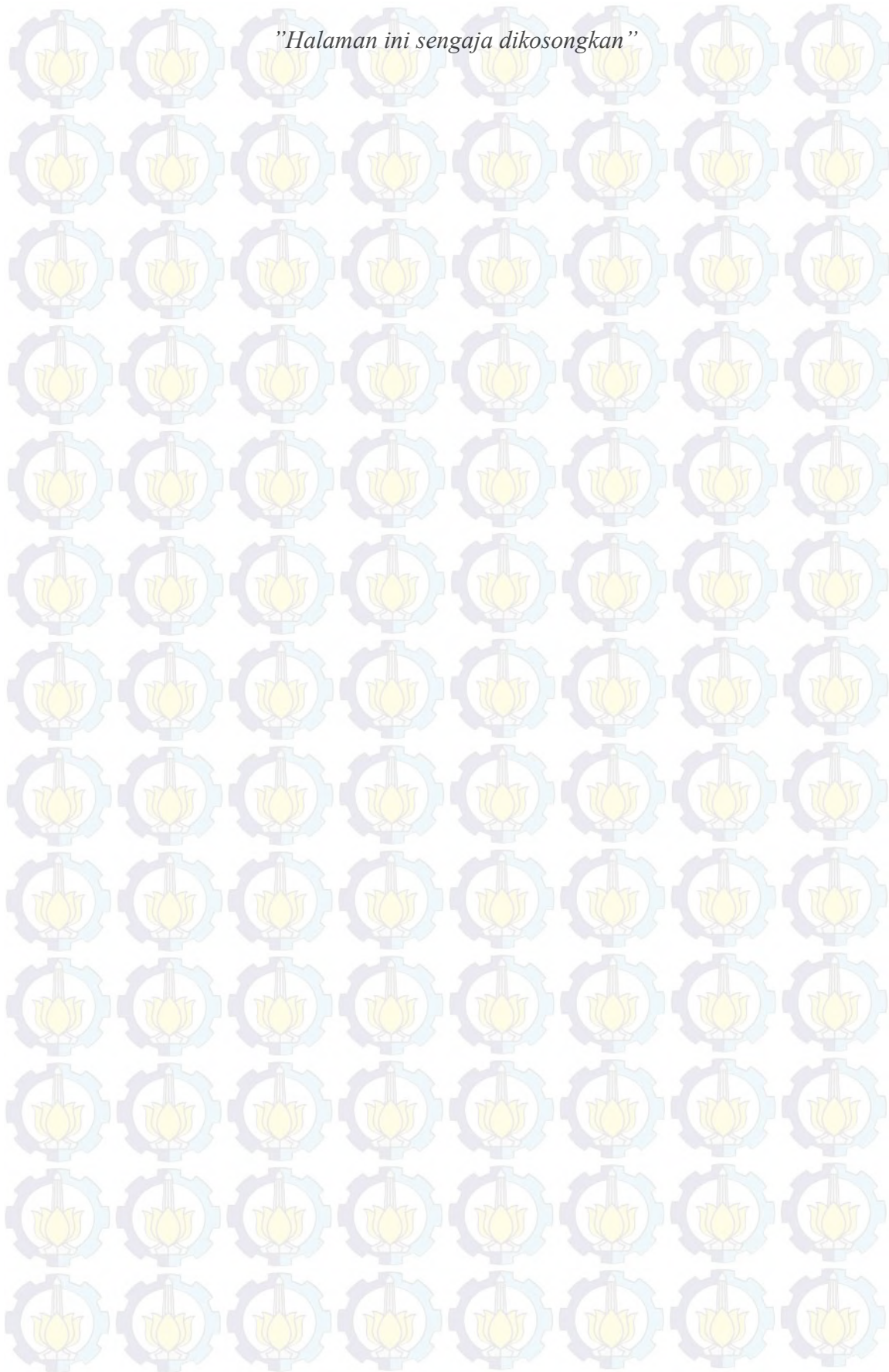
Tabel 4.9 menunjukkan hasil perhitungan parameter termodinamika dari grafik $\ln(P/P^0)$ vs $1/T$ (Gambar 4.23). Panas adsorpsi (entalpi) menunjukkan ukuran kekuatan interaksi antara adsorbat dengan permukaan adsorben (Delavar dkk., 2012 ; Zhang dkk., 2014). Nilai negatif pada entalpi menandakan bahwa proses adsorpsi CO_2 pada material ZXF100-120J bersifat eksotermis. Nilai entalpi yang kecil (<80 kJ/mol) menandakan bahwa adsorpsi ini mengikuti prinsip fisisorpsi (Delavar dkk.,

2012). Semakin kecil nilai entalpi adsorpsi, maka lebih menguntungkan dalam teknologi penangkap CO₂, karena proses adsorpsi akan membutuhkan energi yang kecil pula. Adsorbat (CO₂) dan adsorben (ZXF100-120J) tidak mengalami ikatan kimia, tetapi hanya terjadi interaksi fisika antara momen kuadrupol pada CO₂ dan kation Na⁺ pada kerangka ZXF100-120J.

Nilai perubahan entropi (ΔS) yang didapatkan di dalam penelitian ini bernilai negatif, menandakan bahwa molekul CO₂ yang teradsorpsi ke dalam material ZXF100-120J mengalami penurunan ketidakteraturan antara permukaan gas-padatan atau dengan kata lain molekul gas CO₂ memiliki keteraturan yang tinggi di dalam kerangka ZXF100-120J. Zhang dkk. (2014) melaporkan bahwa nilai entropi untuk adsorpsi CO₂ ke dalam material zeolit NaX lebih negatif dibandingkan zeolit NaY. Nilai entropi yang semakin negatif tersebut akibat jumlah kation Na⁺ di dalam kerangka zeolit-X lebih banyak dibandingkan zeolit-Y. Kation Na⁺ akan membatasi pergerakan molekul CO₂ di dalam material ZXF100-120J, sekaligus berinteraksi secara kuat dengan momen kuadrupol CO₂ (Byrappa dan Yoshimura, 2013 ; Deng dkk., 2012 ; Hutson dkk., 2001 ; Zhang dkk., 2014).

Nilai perubahan energi bebas Gibbs (ΔG) yang didapatkan juga bernilai negatif, menandakan bahwa adsorpsi berlangsung secara spontan tanpa memerlukan energi dari luar. Harga energi bebas Gibbs (ΔG) semakin mendekati nilai positif seiring dengan kenaikan suhu (Tabel 4.9). Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi CO₂ ke dalam material ZXF100-120J semakin sulit terjadi pada suhu yang tinggi.

"Halaman ini sengaja dikosongkan"



BAB 5

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Sintesis zeolit-X berpendukung serat *glasswool* berhasil dilakukan dengan metode hidrotermal. Variasi terhadap kondisi hidrotermal dilakukan pada suhu hidrotermal 90°C, 100°C, 110°C dan 120°C, serta waktu hidrotermal selama 72 – 144 jam. Hasil yang diperoleh melalui variasi suhu dan waktu hidrotermal memberikan pengaruh terhadap fasa zeolit serta kristalinitas zeolit-X di atas permukaan serat *glasswool*. Fasa zeolit-X murni hanya akan terbentuk di atas permukaan serat *glasswool* dengan kondisi hidrotermal sebagai berikut : (1) suhu lebih rendah (90°C-100°C) dengan batas waktu hidrotermal 144 jam; (2) suhu lebih tinggi (110°C-130°C) dengan batas waktu hidrotermal 15 jam – 72 jam; (3) kristalinitas tertinggi yang mencapai 88% dengan morfologi oktahedral yang sempurna dibandingkan penelitian sebelumnya (Devianti, 2014 ; Tyastari, 2015 ; Venta, 2015), diperoleh pada suhu 100°C selama 120 jam.

Pengujian kapasitas adsorpsi dan desorpsi CO₂ terhadap zeolit-X berpendukung serat *glasswool* dengan kristalinitas tertinggi (ZXF100-120J) dilakukan menggunakan metode gravimetri. Kapasitas adsorpsi CO₂ yang didapatkan pada variasi suhu 30°C, 40°C dan 50°C pada tekanan 1 bar berturut-turut sebesar 24,5 ; 15,3 dan 12,5% berat. Jumlah CO₂ yang dapat didesorpsi kembali pada suhu 30°C, 40°C dan 50°C pada tekanan 1 bar berturut-turut sebesar 76,6; 83,6 dan 89,5% berat.

Kinetika adsorpsi CO₂ pada material ZXF100-120J untuk suhu 30 °C mengikuti model difusi intra partikel, sedangkan untuk suhu 40°C dan 50 °C mengikuti model orde dua semu. Energi aktivasi untuk proses adsorpsi CO₂ (E_a) relatif rendah sebesar 14,8 kJ/mol, menandakan jenis adsorpsi secara fisika atau fisisorpsi (kemisorpsi = 40-50 kJ/mol). Proses adsorpsi CO₂ dalam material ini menggunakan proses fisisorpsi dengan entalpi (ΔH) sebesar -5,092 kJ/mol yang berlangsung secara eksotermis, proses adsorpsi terjadi secara spontan dengan energi bebas Gibbs (ΔG) pada suhu 30 °C, 40 °C dan 50 °C berturut-turut sebesar

-0,725 ; -0,581 dan -0,283 kJ/mol. Nilai entropi sebesar -0,0144 kJ/K mol menandakan bahwa gas CO₂ teradsorpsi ke dalam material ZXF100-120J dengan keteraturan tinggi.

5.2 Saran

Kristal zeolit-X yang terbentuk di atas serat *glasswool* dalam penelitian ini masih belum memiliki homogenitas sempurna, meskipun memiliki kristalinitas tertinggi serta morfologi kristal zeolit-X berbentuk oktahedral yang sangat kristalin. Akan tetapi, kapasitas adsorpsi CO₂ ke dalam material zeolit-X berpendukung serat *glasswool* cukup tinggi hingga mencapai 24,5% berat dibandingkan dengan penelitian sebelumnya (Devianti, 2014 ; Tyastari 2015 ; Venta, 2015) dan hampir mendekati hasil penelitian sebelumnya yang mencapai 30% berat (Akhtar, 2011).

Oleh karena itu, perlu dilakukan studi lanjut mengenai :

1. Pengaruh *seeding* kristal zeolit-X murni saat proses hidrotermal terhadap homogenitas kristal di atas permukaan serat *glasswool*
2. Pengaruh kristalinitas zeolit-X terhadap kapasitas adsorpsi CO₂
3. Pengaruh variasi tekanan terhadap kapasitas adsorpsi CO₂ pada suhu ruang
4. Adsorpsi gas polutan lain di udara pada material zeolit-X berpendukung serat.

DAFTAR PUSTAKA

- Abrishamkar M., Azizi S. N. and Kazemian H. (2011) Using Taguchi Robust Design Method to Develop an Optimized Synthesis Procedure for Nanocrystals of ZSM-5 Zeolite. *Z. Für Anorg. Allg. Chem.* **637**, 154–159.
- Ahmad K., Mowla O., Kennedy E. M., Dlugogorski B. Z., Mackie J. C. and Stockenhuber M. (2013) A Melamine-Modified β -Zeolite with Enhanced CO₂ Capture Properties. *Energy Technol.* **1**, 345–349.
- Akhtar F. and Bergström L. (2011) Colloidal Processing and Thermal Treatment of Binderless Hierarchically Porous Zeolite 13X Monoliths for CO₂ Capture. *J. Am. Ceram. Soc.* **94**, 92–98.
- Akhtar F., Liu Q., Hedin N. and Bergstrom L. (2012) Strong and binder free structured zeolite sorbents with very high CO₂-over-N₂ selectivities and high capacities to adsorb CO₂ rapidly. *Energy Env. Sci* **5**, 7664–7673.
- Anderson S. and Newel R. (2003) Prospects for Carbon Capture and Storage Technologies. In *Resources for The Future RFF*, Washington DC, 1–67.
- Atkins P. and de Paula J. (2006) *Physical Chemistry*. Eighth., W. H. Freeman and Company, New York.
- Baerlocher C., McCusker L. B. and Olson D. H. (2007) Introduction and explanatory notes. In *Atlas of Zeolite Framework Types (Sixth Edition)* (eds. C. Baerlocher and L. B. M. H. Olson). Elsevier Science B.V., Amsterdam, 3–11.
- Barrer R. M. (1988) Zeolite synthesis : an overview. In *Surface Organometallic Chemistry : Molecular Approaches to Surface Catalysis* (ed. Basset, J. M.). Springer Netherlands, 221–244.
- Barton Cole E., Lakkaraju P. S., Rampulla D. M., Morris A. J., Abelev E. and Bocarsly A. B. (2010) Using a One-Electron Shuttle for the Multielectron Reduction of CO₂ to Methanol: Kinetic, Mechanistic, and Structural Insights. *J. Am. Chem. Soc.* **132**, 11539–11551.
- Bezerra D. P., Silva F. W. M. da, Moura P. A. S. de, Sousa A. G. S., Vieira R. S., Rodriguez-Castellon E. and Azevedo D. C. S. (2014) CO₂ adsorption in amine-grafted zeolite 13X. *Appl. Surf. Sci.* **314**, 314–321.
- Bonenfant D., Kharoune M., Niquette P., Mimeault M. and Hausler R. (2008) Advances in principal factors influencing carbon dioxide adsorption on zeolites. *Sci. Technol. Adv. Mater.* **9**, 7-13.
- Buckingham A. D. and Disch R. L. (1963) The Quadrupole Moment of the Carbon Dioxide Molecule. *Proc. R. Soc. Lond. Math. Phys. Eng. Sci.* **273**, 275–289.

- Byrappa K. and Yoshimura M. (2013) 6 - Hydrothermal Synthesis and Growth of Zeolites. In *Handbook of Hydrothermal Technology (Second Edition)* (eds. K. Byrappa and M. Yoshimura). William Andrew Publishing, Oxford, 269–347.
- Chang F.-Y., Chao K.-J., Cheng H.-H. and Tan C.-S. (2009) Adsorption of CO₂ onto amine-grafted mesoporous silicas. *Sep. Purif. Technol.* **70**, 87–95.
- Charkhi A., Kazemeini M., Ahmadi S. J. and Kazemian H. (2012) Fabrication of granulated NaY zeolite nanoparticles using a new method and study the adsorption properties. *Powder Technol.* **231**, 1–6.
- Chester A. W. and Derouane E. G. (2009) *Zeolite Characterization and Catalysis*., Springer, New York.
- Cheung O., Bacsik Z., Liu Q., Mace A. and Hedin N. (2013) Adsorption kinetics for CO₂ on highly selective zeolites NaKA and nano-NaKA. *Appl. Energy* **112**, 1326–1336.
- Cohen A. B. (1971) *Concepts of Nuclear Physics*., McGraw-Hill, New York.
- Cundy C. S. and Cox P. A. (2005) The hydrothermal synthesis of zeolites: Precursors, intermediates and reaction mechanism. *Microporous Mesoporous Mater.* **82**, 1–78.
- D'Alessandro D. M., Smit B. and Long J. R. (2010) Carbon Dioxide Capture: Prospects for New Materials. *Angew. Chem. Int. Ed.* **49**, 6058–6082.
- Damen K., Faaij A. and Turkenburg W. (2006) Health, Safety and Environmental Risks of CO₂ Storage – Overview of Mechanism and Current Knowledge. *Climatic Change* **74**, 289–318.
- Delavar M., Asghar Ghoreyshi A., Jahanshahi M., Khalili S. and Nabian N. (2012) Equilibria and kinetics of natural gas adsorption on multi-walled carbon nanotube material. *RSC Adv.* **2**, 4490–4497.
- Deng H., Yi H., Tang X., Yu Q., Ning P. and Yang L. (2012) Adsorption equilibrium for sulfur dioxide, nitric oxide, carbon dioxide, nitrogen on 13X and 5A zeolite. *Chem. Eng. J.* **188**, 77–85.
- Devianti V. A. (2014) Sintesis Zeolit-X Berpendukung Material Serat dengan Variasi Suhu Dan Waktu Hidrotermal Untuk Adsorpsi Gas Karbon Dioksida. Thesis, Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Díaz E., Muñoz E., Vega A. and Ordóñez S. (2008) Enhancement of the CO₂ retention capacity of X zeolites by Na- and Cs-treatments. *Chemosphere* **70**, 1375–1382.

Ehleringer J. R., Cerling T. E. and Dearing M. D. (2005) *A History of Atmospheric CO₂ and its effects on Plants, Animals, and Ecosystem.*, Springer Verlag, New York.

Ellison S. L. R., Barwick V. J. and Farrant T. J. D. (2009) *Practical Statistics for the Analytical Scientist*. 2nd ed., RSC Publishing, London.

Eulenberger G. R., Shoemaker D. P. and Keil J. G. (1967) Crystal structures of hydrated and dehydrated synthetic zeolites with faujasite aluminosilicate frameworks. I. The dehydrated sodium, potassium, and silver forms. *J. Phys. Chem.* **71**, 1812–1819.

European Commission (2007) *CO₂ Capture and Storage Projects.*, European Communities, Directorate-General for Research Sustainable Energy Systems, Belgium.

Falahati H. and Barz D. P. J. (2013) Evaluation of hydrogen sorption models for AB5-type metal alloys by employing a gravimetric technique. *Int. J. Hydrog. Energy* **38**, 8838–8851.

Figini-Albisetti A., Velasco L. F., Parra J. B. and Ania C. O. (2010) Effect of outgassing temperature on the performance of porous materials. *Seventh Int. Symp. Eff. Surf. Heterog. Adsorpt. Catal. Solids - ISSHAC-7* **256**, 5182–5186.

Figuerola J. D., Fout T., Plasynski S., McIlvried H. and Srivastava R. D. (2008) Advances in CO₂ capture technology—The U.S. Department of Energy's Carbon Sequestration Program. *Int. J. Greenh. Gas Control* **2**, 9–20.

Furukawa H. and Yaghi O. M. (2009) Storage of hydrogen, methane, and carbon dioxide in highly porous covalent organic frameworks for clean energy applications. *J. Am. Chem. Soc.* **131**, 8875–8883.

Georgiev D., Bogdanov B., Angelova K., Markovska I. and Hristov Y. (2009) Synthetic Zeolites - Structure, Clasification, Current Tends in Zeolite Synthesis. In *Economics and Society development on the Base of Knowledge* International Science conference. Stara Zagora, Bulgaria., 1–5.

Groen J. C., Hamminga G. M., Moulijn J. A. and Perez-Ramirez J. (2007) In situ monitoring of desilication of MFI-type zeolites in alkaline medium. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **9**, 4822–4830.

Hamelers H. V. M., Schaetzle O., Paz-García J. M., Biesheuvel P. M. and Buisman C. J. N. (2013) Harvesting Energy from CO₂ Emissions. *Env. Sci. Technol. Lett.* **1**, 31–35.

Hao G.-P., Li W.-C., Qian D. and Lu A.-H. (2010) Rapid Synthesis of Nitrogen-Doped Porous Carbon Monolith for CO₂ Capture. *Adv. Mater.* **22**, 853–857.

- Harlick P. J. E. and Tezel F. H. (2004) An experimental adsorbent screening study for CO₂ removal from N₂. *Microporous Mesoporous Mater.* **76**, 71–79.
- Hauchhum L. and Mahanta P. (2014) Carbon dioxide adsorption on zeolites and activated carbon by pressure swing adsorption in a fixed bed. *Int. J. Energy Environ. Eng.* **5**, 349–356.
- Hedin N., Andersson L., Bergström L. and Yan J. (2013) Adsorbents for the post-combustion capture of CO₂ using rapid temperature swing or vacuum swing adsorption. *Appl. Energy* **104**, 418–433.
- Hutson N. D., Zajic S. C. and Yang R. T. (2000) Influence of Residual Water on the Adsorption of Atmospheric Gases in Li-X Zeolite: Experiment and Simulation. *Ind. Eng. Chem. Res.* **39**, 1775–1780.
- Jacobs P. A., van Cauwelaert F. H., Vansant E. F. and Uytterhoeven J. B. (1973) Surface probing of synthetic faujasites by adsorption of carbon dioxide. Part 1.-Infra-red study of carbon dioxide adsorbed on Na-Ca-Y and Na-Mg-Y zeolites. *J. Chem. Soc. Faraday Trans. 1 Phys. Chem. Condens. Phases* **69**, 1056–1068.
- Joshi U. D., Joshi P. N., Tamhankar S. S., Joshi V. P., Idage B. B., Joshi V. V. and Shiralkar V. P. (2002) Influence of the size of extraframework monovalent cations in X-type zeolite on their thermal behavior. *Thermochim. Acta* **387**, 121–130.
- Kamiuto K., Abe S. and Ermalina (2002) Effect of desorption temperature on CO₂ adsorption equilibria of the honeycomb zeolite beds. *Appl. Energy* **72**, 555–564.
- Keeling C. D., Piper S. C., Bacastow R. B., Wahlen M., Whorf T. P., Heimann M. and Meijer H. A. (2001) Atmospheric CO₂ and ¹³CO₂ exchange with the terrestrial biosphere and oceans from 1978 to 2000: observations and carbon cycle implications. *Scripps Institution of Oceanography* **1-6**, 88.
- Khelifa A., Benchehida L. and Derriche Z. (2004) Adsorption of carbon dioxide by X zeolites exchanged with Ni²⁺ and Cr³⁺: isotherms and isosteric heat. *J. Colloid Interface Sci.* **278**, 9–17.
- Kim S.-N., Son W.-J., Choi J.-S. and Ahn W.-S. (2008) CO₂ adsorption using amine-functionalized mesoporous silica prepared via anionic surfactant-mediated synthesis. *Microporous Mesoporous Mater.* **115**, 497–503.
- Larlus O., Valtchev V., Patasin J., Faust A. C. and Moquin B. (2002) Preparation of silicalite-1/glass fiber composites by one and two step hydrothermal synthesis. *Microporous Mesoporous Mater.* **56**, 175–184.
- Lee H. J., Kim Y. M., Kweon O. S. and Kim I. J. (2007) Structural and morphological transformation of NaX zeolite crystals at high temperature.

Refereed Rep. IX Conf. Exhib. Eur. Ceram. Soc. IX Conf. Exhib. Eur. Ceram. Soc. **27**, 561–564.

Lee J.-S., Kim J.-H., Kim J.-T., Suh J.-K., Lee J.-M. and Lee C.-H. (2002) Adsorption Equilibria of CO₂ on Zeolite 13X and Zeolite X/Activated Carbon Composite. *J. Chem. Eng. Data* **47**, 1237–1242.

Lee S. C., Hsieh C. C., Chen C. H. and Chen Y. S. (2013) CO₂ Adsorption by Y-Type Zeolite Impregnated with Amines in Indoor Air. *Aerosol Air Qual. Res.* **13**, 360–366.

Li J.-R., Ma Y., McCarthy M. C., Sculley J., Yu J., Jeong H.-K., Balbuena P. B. and Zhou H.-C. (2011) Carbon dioxide capture-related gas adsorption and separation in metal-organic frameworks. *Coord. Chem. Rev.* **255**, 1791–1823.

Li L., Zhao N., Wei W. and Sun Y. (2013a) A review of research progress on CO₂ capture, storage, and utilization in Chinese Academy of Sciences. *Fuel* **108**, 112–130.

Liu B. S., Tang D. C. and Au C. T. (2005) Fabrication of analcime zeolite fibers by hydrothermal synthesis. *Microporous Mesoporous Mater.* **86**, 106–111.

Liu Q., Shi J., Zheng S., Tao M., He Y. and Shi Y. (2014) Kinetics Studies of CO₂ Adsorption/Desorption on Amine-Functionalized Multiwalled Carbon Nanotubes. *Ind. Eng. Chem. Res.* **53**, 11677–11683.

Li Y., Yi H., Tang X., Li F. and Yuan Q. (2013b) Adsorption separation of CO₂/CH₄ gas mixture on the commercial zeolites at atmospheric pressure. *Chem. Eng. J.* **229**, 50–56.

Louis B., Tezel C., Kiwi-Minsker L. and Renken A. (2001) Synthesis of structured filamentous zeolite materials via ZSM-5 coatings of glass fibrous supports. *Catal. Today* **69**, 365–370.

Miller B. G. (2011) 10 - CO₂ Capture and Storage. In *Clean Coal Engineering Technology* Butterworth-Heinemann, Boston, 483–511.

Millward A. R. and Yaghi O. M. (2005) Metal–Organic Frameworks with Exceptionally High Capacity for Storage of Carbon Dioxide at Room Temperature. *J Am Chem Soc* **127**, 17998–17999.

Molina A. and Poole C. (2004) A comparative study using two methods to produce zeolites from fly ash. *Process. Dispos. Miner. Ind. Waste* **03 17**, 167–173.

Musyoka N. M., Petrik L. F., Hums E., Kuhnt A. and Schwieger W. (2015) Thermal stability studies of zeolites A and X synthesized from South African coal fly ash. *Research on Chemical Intermediates* **41**, 575–582.

- Ojha K., Pradhan N. and Samanta A. (2004) Zeolite from fly ash: synthesis and characterization. *Bull. Mater. Sci.* **27**, 555–564.
- Pham T. D., Xiong R., Sandler S. I. and Lobo R. F. (2014) Experimental and computational studies on the adsorption of CO₂ and N₂ on pure silica zeolites. *Microporous Mesoporous Mater.* **185**, 157–166.
- Pillai R. S., Peter S. A. and Jasra R. V. (2012) CO₂ and N₂ adsorption in alkali metal ion exchanged X-Faujasite: Grand canonical Monte Carlo simulation and equilibrium adsorption studies. *Microporous Mesoporous Mater.* **162**, 143–151.
- Pires J., de Carvalho M. B., Ribeiro F. R. and Derouane E. G. (1993) Carbon dioxide in Y and ZSM-20 zeolites: Adsorption and infrared studies. *J. Mol. Catal.* **85**, 295–303.
- Pirngruber G. D., Guillou F., Gomez A. and Clausse M. (2013) A theoretical analysis of the energy consumption of post-combustion CO₂ capture processes by temperature swing adsorption using solid sorbents. *Int. J. Greenh. Gas Control* **14**, 74–83.
- Qasim A., Nisar S., Shah A., Khalid M. S. and Sheikh M. A. (2015) Optimization of process parameters for machining of AISI-1045 steel using Taguchi design and ANOVA. *Simul. Model. Pract. Theory* **59**, 36–51.
- Rashidi N. A., Yusup S. and Hameed B. H. (2013) Kinetic studies on carbon dioxide capture using lignocellulosic based activated carbon. *Energy* **61**, 440–446.
- Roy R. K. (2001) *Design of experiments using the Taguchi approach: 16 steps to product and process improvement.*, John Wiley & Sons.
- Sahai H. and Ageel M. I. (2000) *The Analysis of Variance : Fixed, Random and Mixed Models.*, Springer, New York.
- Sen A. and Srivastava M. (1990) *Regression Analysis :Theory, Methods, and Applications.*, Springer Verlag, New York.
- Serna-Guerrero R. and Sayari A. (2010) Modeling adsorption of CO₂ on amine-functionalized mesoporous silica. 2: Kinetics and breakthrough curves. *Chem. Eng. J.* **161**, 182–190.
- Shafeeyan M. S., Daud W. M. A. W., Shamiri A. and Aghamohammadi N. (2015) Modeling of Carbon Dioxide Adsorption onto Ammonia-Modified Activated Carbon: Kinetic Analysis and Breakthrough Behavior. *Energy Fuels* **29**, 6565–6577.
- Shao W., Zhang L., Li L. and Lee R. (2009) Adsorption of CO₂ and N₂ on synthesized NaY zeolite at high temperatures. *Adsorption* **15**, 497–505.

Shaphiro S. S. and Wilk M. B. (1965) An analysis of variance test for normality. *Biometrika* **52**, 591–611.

Silva J. A. C., Schumann K. and Rodrigues A. E. (2012) Sorption and kinetics of CO₂ and CH₄ in binderless beads of 13X zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.* **158**, 219–228.

Siporin S. E., McClaine B. C. and Davis R. J. (2003) Adsorption of N₂ and CO₂ on Zeolite X Exchanged with Potassium, Barium, or Lanthanum. *Langmuir* **19**, 4707–4713.

Siriwardane R., Shen M., Fisher E., Poston J. and Shamsi A. (2001) Adsorption and desorption of CO₂ on solid sorbents. *J. Energy Environ. Res.* **1**, 19–22.

Smith N., Miller G., Aandi I., Gadsden R. and Davison J. (2013) Performance and Costs of CO₂ Capture at Gas Fired Power Plants. *Energy Procedia* **37**, 2443–2452.

Snider M. T. and Verweij H. (2014) Gas sorption studies on Zeolite Y membrane materials for post-combustion CO₂ capture in coal-fired plants. *Spec. Issue Devoted 6th Int. Zeolite Membr. Meet.* **192**, 3–7.

De Souza L. K. C., Wickramaratne N. P., Ello A. S., Costa M. J. F., da Costa C. E. F. and Jaroniec M. (2013) Enhancement of CO₂ adsorption on phenolic resin-based mesoporous carbons by KOH activation. *Carbon* **65**, 334–340.

Tittarelli F., Stazi F., Politi G., di Perna C. and Munafò P. (2013) Degradation of Glass Mineral Wool Insulation after 25 Years in Masonry Cavity Wall. *International Journal of Chemical, Environmental & Biological Sciences (IJCEBS)* **1**, 779–783.

Tounsi H., Mseddi S. and Djemel S. (2009) Preparation and characterization of Na-LTA zeolite from Tunisian sand and aluminum scrap. *Phys. Procedia* **2**, 1065 – 1074.

Tuinier M. J., Hamers H. P. and van Sint Annaland M. (2011) Techno-economic evaluation of cryogenic CO₂ capture—A comparison with absorption and membrane technology. *Int. J. Greenh. Gas Control* **5**, 1559–1565.

Tyastari, A. W. (2015) Sintesis Zeolit-X Berpendukung Material Serat dengan Variasi Waktu Hidrotermal Untuk Adsorpsi Gas Karbon Dioksida. Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember.

Uribe-Romo F. J., Hunt J. R., Furukawa H., Klöck C., O’Keeffe M. and Yaghi O. M. (2009) A Crystalline Imine-Linked 3-D Porous Covalent Organic Framework. *J Am Chem Soc* **131**, 4570–4571.

- Valtchev V., Hedluna S., Schoeman B. J., Sterte J. and Mintova S. (1996) Deposition of continuous silicalite-1 film on inorganic fiber. *Microporous Mesoporous Mater.* **8**, 93–101.
- Venta, Y. T. P. (2015) Sintesis Zeolit-X Berpendukung Material Serat dengan Variasi Suhu Hidrotermal Untuk Adsorpsi Gas Karbon Dioksida. Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Villamizar J. A. O., Martinez J. A. H. and Reyes C. A. R. (2012) A comparative study on conversion of industrial coal by-products in low SiO₂ zeolite of faujasite type. *Dyna* **79**, 105–114.
- Walton K. S., Abney M. B. and Douglas LeVan M. (2006) CO₂ adsorption in Y and X zeolites modified by alkali metal cation exchange. *Microporous Mesoporous Mater.* **91**, 78–84.
- Wardani, A. R. K (2015) Sintesis Zeolit-X Berpendukung Serat Gelas Sebagai Material Penyerap CO₂ : Variasi Waktu Perendaman dan Konsentrasi NaOH Sebagai Aktivator Serat Gelas. Skripsi, Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- West A. R. (2014) *Solid state chemistry and its application*. 2nd ed., John Willey and Sons, United Kingdom.
- Widiastuti N., Wu H., Ang H. M. and Zhang D. (2011) Removal of ammonium from greywater using natural zeolite. *Desalination* **277**, 15–23.
- Williams J. H. (1993) The molecular electric quadrupole moment and solid-state architecture. *Acc. Chem. Res.* **26**, 593–598.
- Wu S.-H., Hsieh C.-C., Chiang C.-C., Horng J.-J., Pan W.-P. and Shu C.-M. (2012) Thermal analyses of home-made zeolite by DSC and TG. *J. Therm. Anal. Calorim.* **109**, 945–950.
- Xu G., Li L., Yang Y., Tian L., Liu T. and Zhang K. (2012) A novel CO₂ cryogenic liquefaction and separation system. *Energy* **42**, 522–529.
- Xu X., Zhao X., Sun L. and Liu X. (2009) Adsorption separation of carbon dioxide, methane and nitrogen on monoethanol amine modified β -zeolite. *J. Nat. Gas Chem.* **18**, 167–172.
- Yamazaki S. and Tsutsumi K. (1995) Synthesis of an A-type zeolite membrane on silicon oxide film-silicon, quartz plate and quartz fiber filter. *Microporous Mater.* **4**, 205–212.
- Yang H., Xu Z., Fan M., Gupta R., Slimane R. B., Bland A. E. and Wright I. (2008) Progress in carbon dioxide separation and capture: A review. *J. Environ. Sci.* **20**, 14–27.

Yang S.-T., Kim J. and Ahn W.-S. (2010) CO₂ adsorption over ion-exchanged zeolite beta with alkali and alkaline earth metal ions. *Microporous Mesoporous Mater.* **135**, 90–94.

Yani A., Destiarti L. and Wahyuni N. (2013) Sintesis Zeolit A dengan Variasi Sumber Silika dan Alumina. *JKK Univ. Tanjungpura* **2**, 1–6.

Yi H., Deng H., Tang X., Yu Q., Zhou X. and Liu H. (2012) Adsorption equilibrium and kinetics for SO₂, NO, CO₂ on zeolites FAU and LTA. *J. Hazard. Mater.* **203–204**, 111–117.

Yu C.-H., Huang C.-H. and Tan C.-S. (2012) A Review of CO₂ Capture by Absorption and Adsorption. *Aerosol Air Qual. Res.* **12**, 745–769.

Yu L., Gong J., Zeng C. and Zhang L. (2013) Synthesis of binderless zeolite X microspheres and their CO₂ adsorption properties. *Sep. Purif. Technol.* **118**, 188–195.

Zelevák V., Badaničová M., Halamová D., Čejka J., Zukal A., Murafa N. and Goerigk G. (2008) Amine-modified ordered mesoporous silica: Effect of pore size on carbon dioxide capture. *Chem. Eng. J.* **144**, 336–342.

Zhang J., Burke N., Zhang S., Liu K. and Pervukhina M. (2014) Thermodynamic analysis of molecular simulations of CO₂ and CH₄ adsorption in FAU zeolites. *Chem. Eng. Sci.* **113**, 54–61.

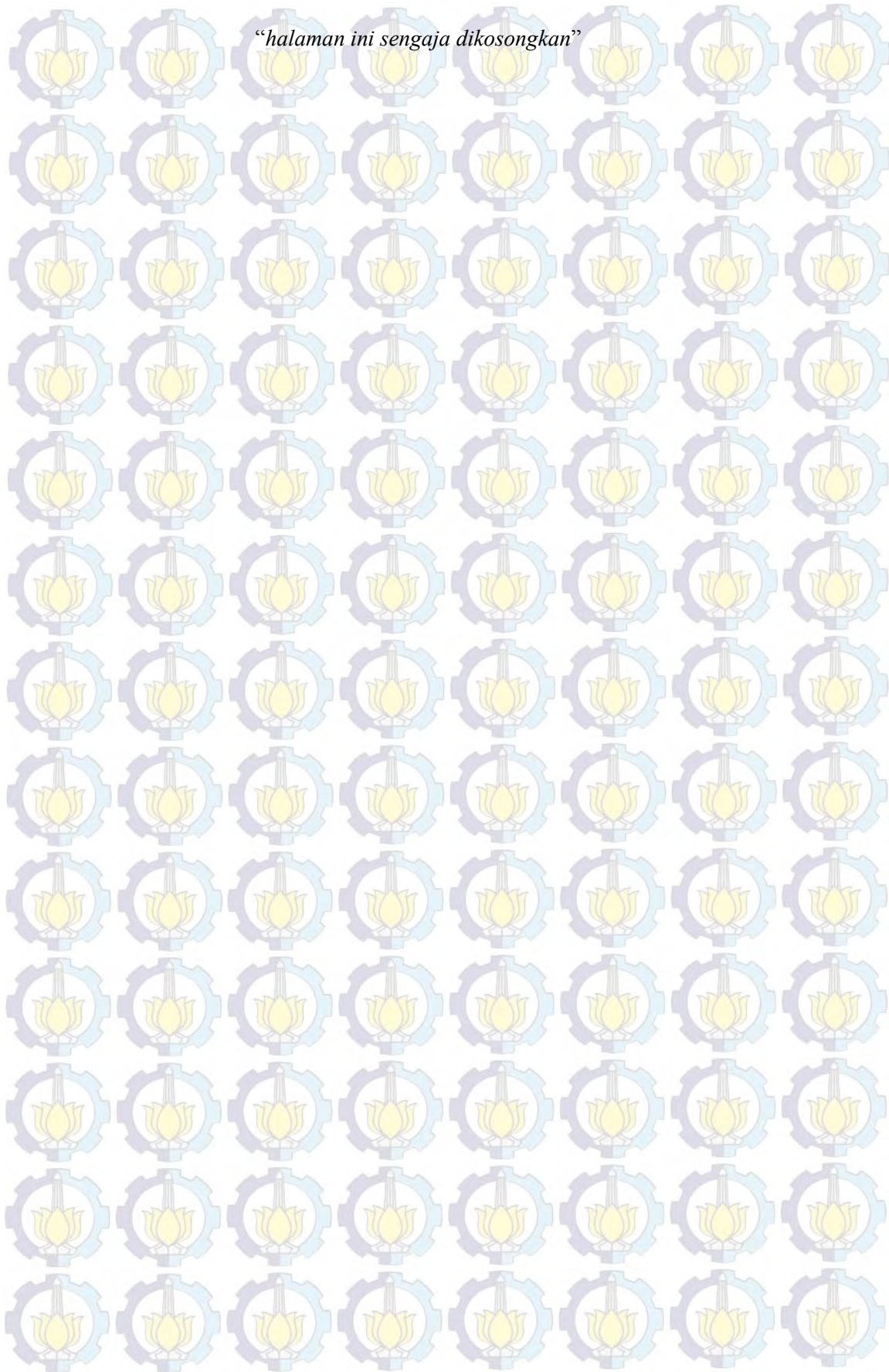
Zhang X., Tong D., Zhao J. and YangLi X. (2013) Synthesis of NaX zeolite at room temperature and its characterization. *Materials Letters* **104**, 80–83.

Zhang Z., Zhang W., Chen X., Xia Q. and Li Z. (2010) Adsorption of CO₂ on Zeolite 13X and Activated Carbon with Higher Surface Area. *Sep. Sci. Technol.* **45**, 710–719.

Zhao Z., Cui X., Ma J. and Li R. (2007) Adsorption of carbon dioxide on alkali-modified zeolite 13X adsorbents. *Int. J. Greenh. Gas Control* **1**, 355–359.

Zukal A., Arean C. O., Delgado M. R., Nachtigall P., Pulido A., Mayerová J. and Čejka J. (2011) Combined volumetric, infrared spectroscopic and theoretical investigation of CO₂ adsorption on Na-A zeolite. *Microporous Mesoporous Mater.* **146**, 97–105.

“halaman ini sengaja dikosongkan”



LAMPIRAN

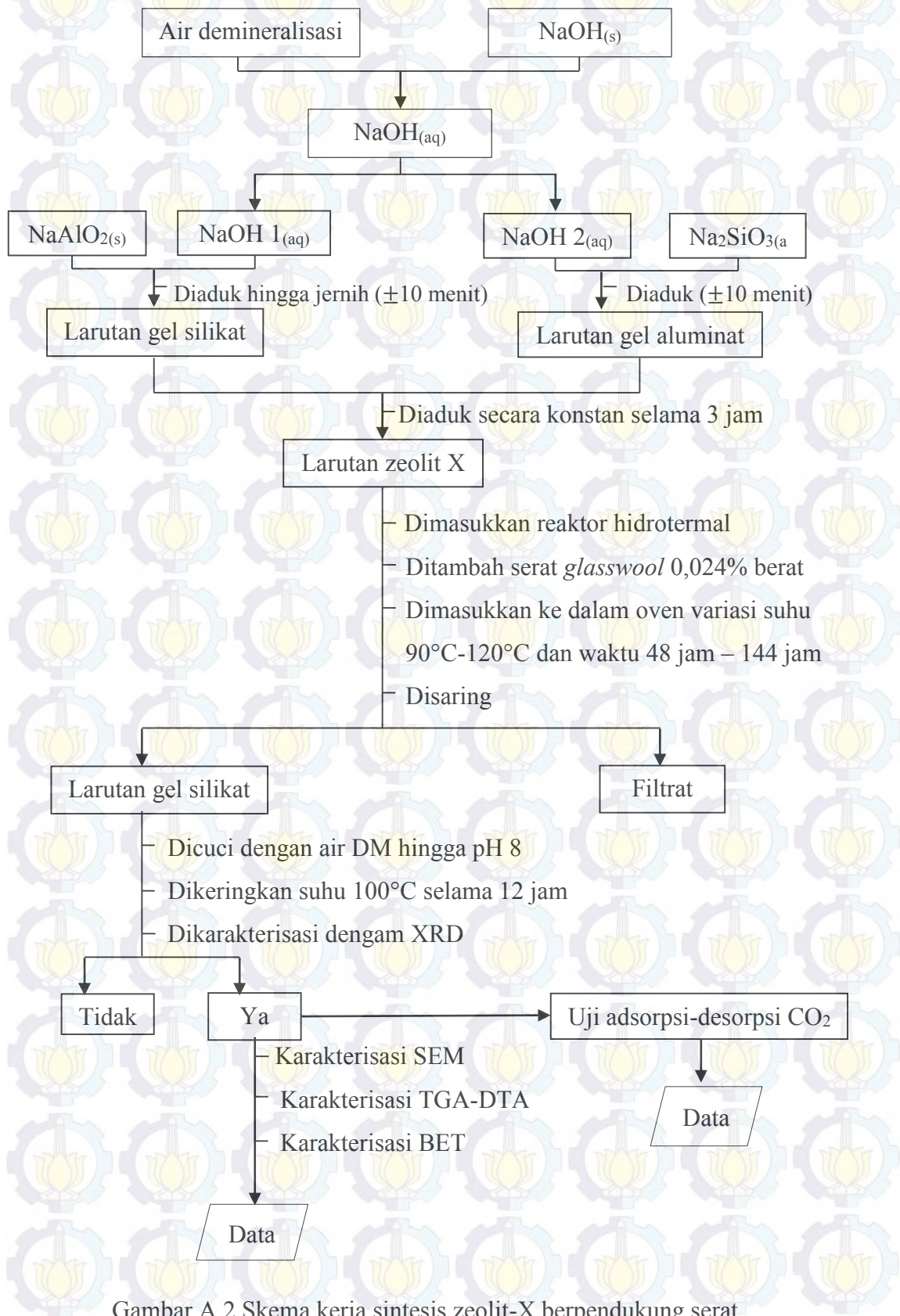
LAMPIRAN A : SKEMA KERJA

1. Aktivasi Serat *Glasswool* (Wardani, 2014)



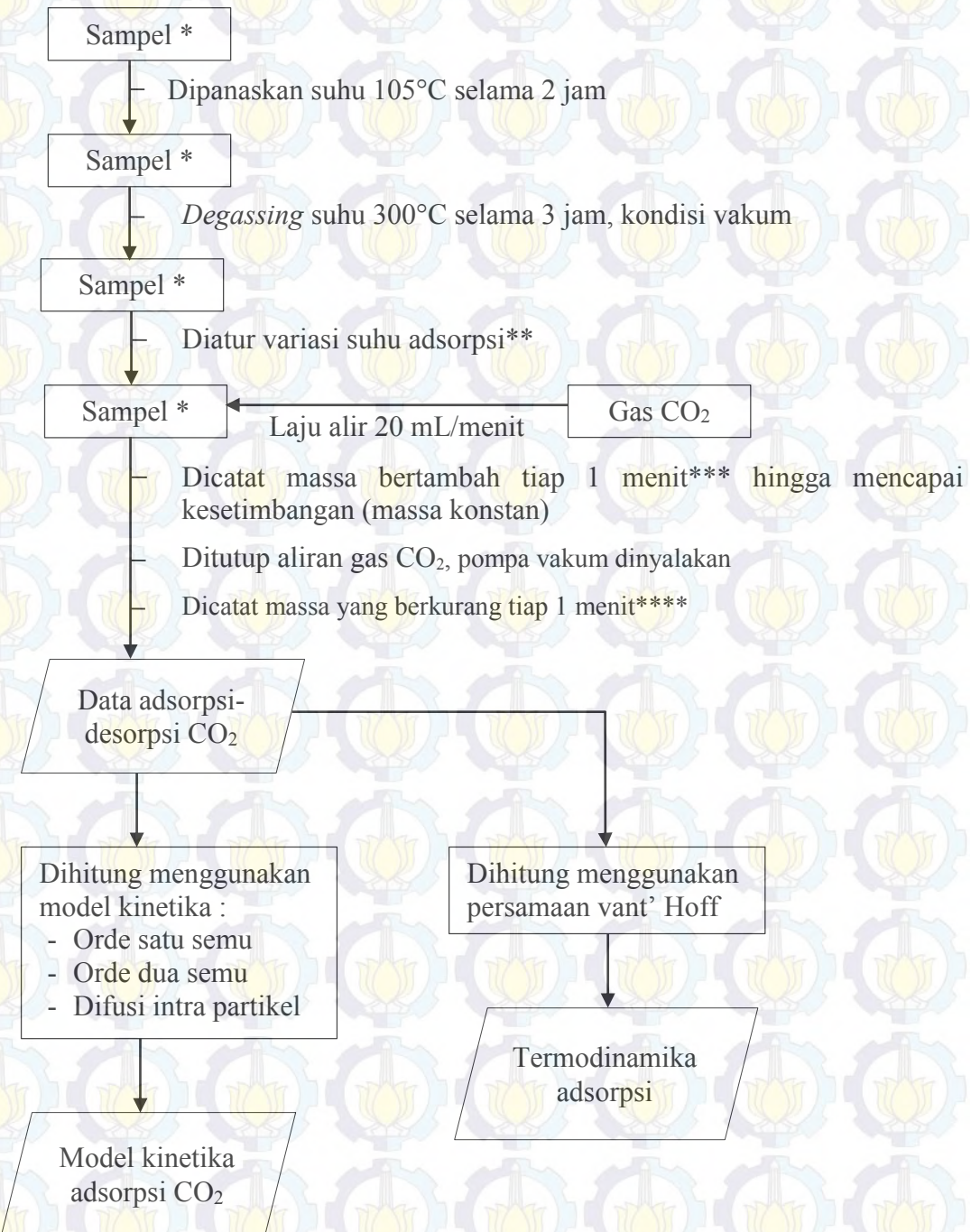
Gambar A.1 Skema kerja aktivasi *glasswool*

2. Sintesis Zeolit X Berpendukung Serat *Glasswool* (Devianti, 2014)



Gambar A.2 Skema kerja sintesis zeolit-X berpendukung serat

3. Uji Adsorpsi-Desorpsi CO₂ (Tyastari, 2015)



Keterangan :

- * = Serat *glasswool*, zeolit X (ZX) dan zeolit X berpendukung serat (ZXF)
- ** = Variasi suhu adsorpsi-desorpsi 30°C, 40°C dan 50°C
- *** = Massa yang bertambah saat proses adsorpsi
- **** = Massa yang berkurang saat proses desorpsi

Gambar A.3 Skema kerja adsorpsi-desorpsi CO₂

LAMPIRAN B : PERHITUNGAN LARUTAN SINTESIS ZEOLIT X

1. Komposisi bahan

- NaAlO₂ terdiri dari Al₂O₃ = 53%
Na₂O = 42,5%
Fe₂O₃ = 0,05% (diabaikan)
- Na₂SiO₃ terdiri dari Na₂O = 17,75%
SiO₂ = 34,25 %
H₂O = 48%

2. Rasio komposisi molar dari zeolit X

Rasio komposisi molar yang digunakan untuk sintesis zeolit X berdasarkan penelitian yang dilakukan oleh Zhang dkk.(2013) yaitu:



3. Perhitungan massa yang dibutuhkan pada masing-masing bahan

▪ 0,2 mol Al₂O₃

- Massa Al₂O₃ yang dibutuhkan :

$$m = n \times Mr = 0,2 \text{ mol} \times 101,96 \text{ gr/mol} = 20,392 \text{ gram}$$

- Al₂O₃ dalam bahan NaAlO₂ sebanyak 53%

Maka, massa NaAlO₂ yang dibutuhkan adalah :

$$\text{Massa NaAlO}_2 = \frac{\text{massa Al}_2\text{O}_3}{\% \text{ Al}_2\text{O}_3} = \frac{20,392}{53\%} = 38,47547 \text{ gram}$$

▪ 1 mol SiO₂

- Massa SiO₂ yang dibutuhkan :

$$m = n \times Mr = 1 \text{ mol} \times 60 \text{ gr/mol} = 60 \text{ gram}$$

- SiO₂ dalam bahan Na₂SiO₃ sebanyak 34,25%

Maka, massa Na₂SiO₃ yang dibutuhkan adalah :

$$\text{Massa Na}_2\text{SiO}_3 = \frac{\text{massa SiO}_2}{\% \text{ SiO}_2} = \frac{60}{34,25\%} = 175,1825 \text{ gram}$$

▪ 200 mol H₂O

- Massa H₂O yang dibutuhkan :

$$m = n \times Mr = 200 \text{ mol} \times 18 \text{ gr/mol} = 3600 \text{ gram}$$

- H₂O dalam bahan Na₂SiO₃ sebanyak 48%

$$\text{Massa H}_2\text{O dalam Na}_2\text{SiO}_3 = 48\% \times 175,1825 \text{ g} = 84,0876 \text{ gram}$$

- Maka, massa H₂O yang perlu ditambah dari air DM adalah:

$$3600 \text{ gram} - 84,0876 \text{ gram} = 3515,9124 \text{ gram}$$

▪ 4 mol Na₂O

- Na₂O dalam bahan NaAlO₂ sebanyak 42,5%

$$\text{Massa Na}_2\text{O dalam NaAlO}_2 :$$

$$42,5\% \times 38,47547 \text{ gram} = 16,35208 \text{ gram}$$

$$\text{Mol Na}_2\text{O dalam NaAlO}_2 = \frac{16,35208 \text{ g}}{62 \text{ g/mol}} = 0,2637 \text{ mol}$$

- Na₂O dalam bahan Na₂SiO₃ sebanyak 17,75%

$$\text{Massa Na}_2\text{O dalam Na}_2\text{SiO}_3 :$$

$$17,75\% \times 175,1825 \text{ gram} = 31,09489 \text{ gram}$$

$$\text{Mol Na}_2\text{O dalam Na}_2\text{SiO}_3 = \frac{31,09489 \text{ g}}{62 \text{ g/mol}} = 0,50153 \text{ mol}$$

- Total mol Na₂O yang telah ada :

$$0,2637 \text{ mol} + 0,50153 \text{ mol} = 0,76528 \text{ mol}$$

Jadi, mol Na₂O yang perlu ditambahkan :

$$4 \text{ mol} - 0,76528 \text{ mol} = 3,23472 \text{ mol}$$

- Sumber Na₂O yang digunakan adalah NaOH, sehingga mol Na₂O yang ditambahkan dikalikan 2 :

$$2 \times 3,23472 \text{ mol} = 6,46944 \text{ mol}$$

- Massa NaOH yang ditambahkan sebanyak :

$$m = n \times Mr$$

$$m_{\text{NaOH}} = 6,46944 \text{ mol} \times 40 \text{ gram/mol} = \pm 258,7776 \text{ gram}$$

▪ Berdasarkan perhitungan yang telah dilakukan, massa bahan yang digunakan untuk sintesis zeolit X masing-masing sebanyak :

$$\text{NaAlO}_2 = 38,47547 \text{ gram}$$

$$\text{Na}_2\text{SiO}_3 = 175,1825 \text{ gram}$$

$$\begin{aligned}\text{H}_2\text{O} &= 3515,9124 \text{ gram} \\ \text{NaOH} &= \pm 258,7776 \text{ gram}\end{aligned}$$

- Tetapi, pada penelitian ini digunakan massa yang lebih kecil sebanyak $\frac{1}{4}$ resep dari perhitungan massa, sehingga didapatkan komposisi masa bahan sebagai berikut :

$$\begin{aligned}\text{NaAlO}_2 &= 1,53902 \text{ gram} \\ \text{Na}_2\text{SiO}_3 &= 7,0073 \text{ gram} \\ \text{H}_2\text{O} &= 140,6365 \text{ gram} \\ \text{NaOH} &= \pm 10,3511 \text{ gram}\end{aligned}$$

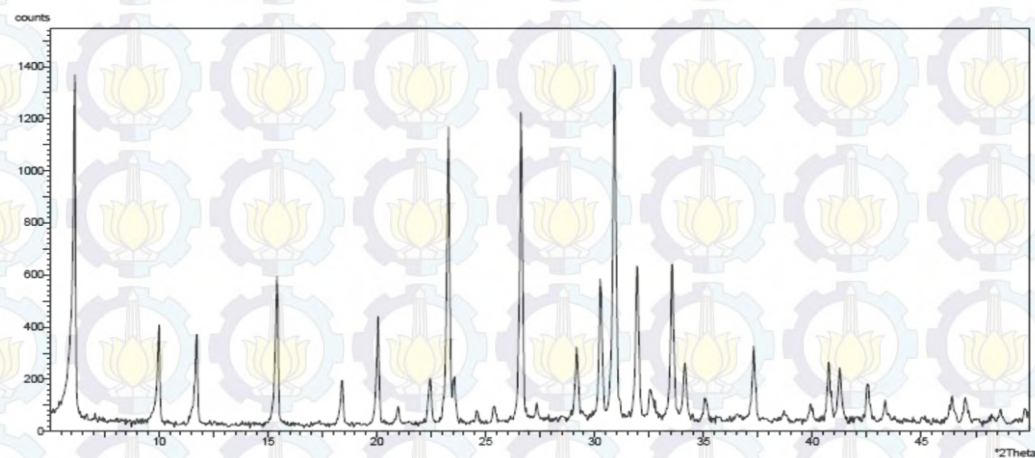
- Perhitungan material serat didapatkan dari jumlah total massa bahan yang digunakan dalam sintesis zeolit X :

$$\begin{aligned}\text{NaAlO}_2 &= 1,5390 \text{ gram} \\ \text{Na}_2\text{SiO}_3 &= 7,0073 \text{ gram} \\ \text{H}_2\text{O} &= 140,6365 \text{ gram} \\ \text{NaOH} &= 10,3511 \text{ gram} + \\ \text{Total} &= \mathbf{159,5339 \text{ gram}}\end{aligned}$$

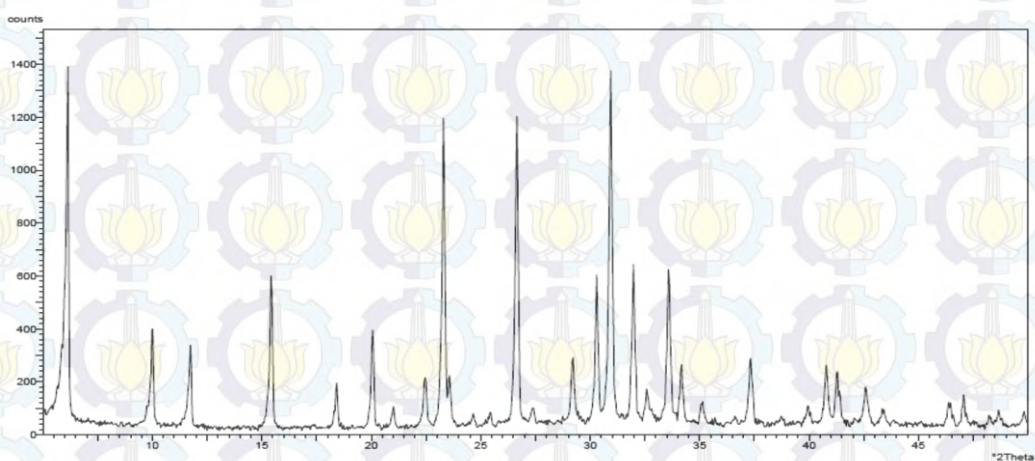
- Massa material serat yang ditambahkan :
0,024% berat = 0,0383 gram

LAMPIRAN C : DATA DIFRAKTOGRAM XRD ZEOLIT

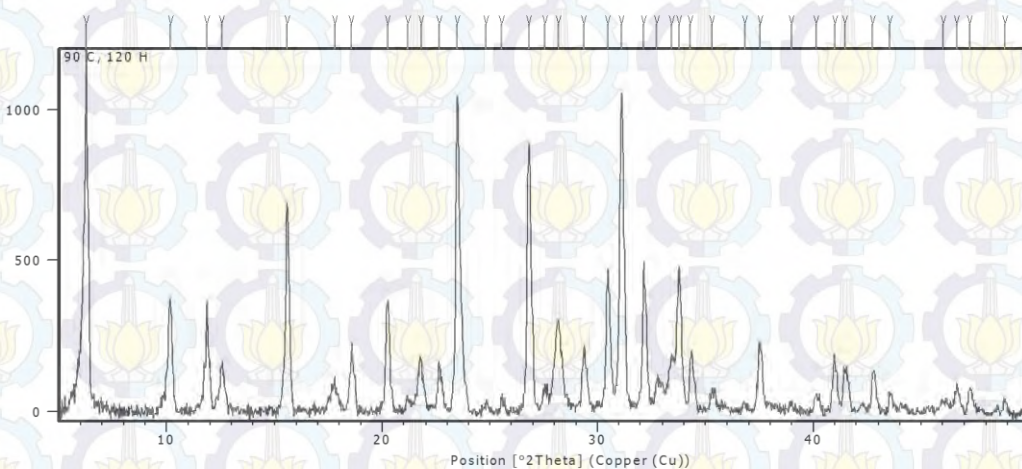
1. Variasi suhu dan waktu hidrotermal



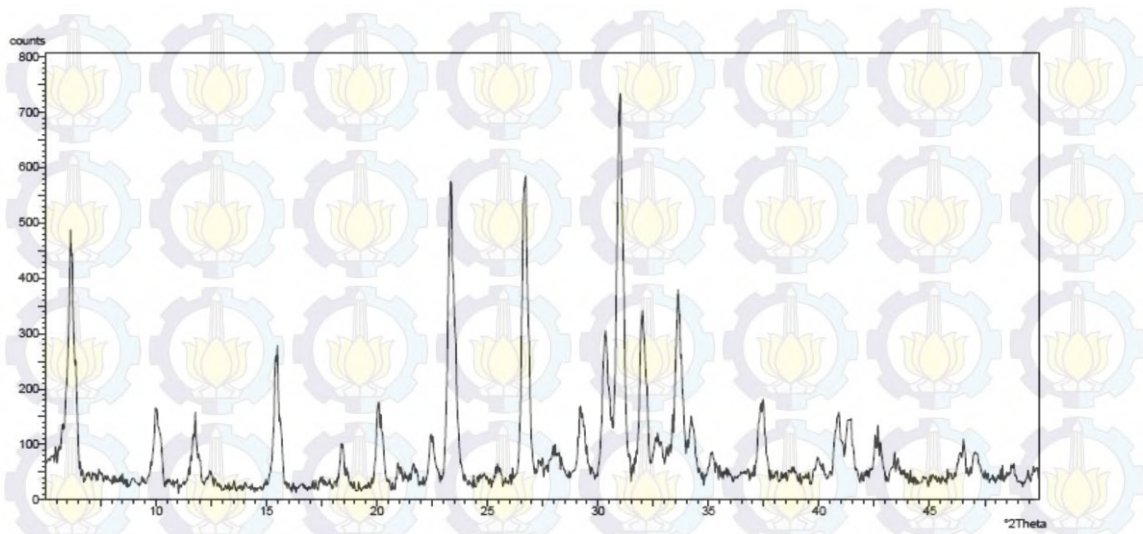
Gambar C.1 Difraktogram ZXF90-72J (90°C, 72 jam)



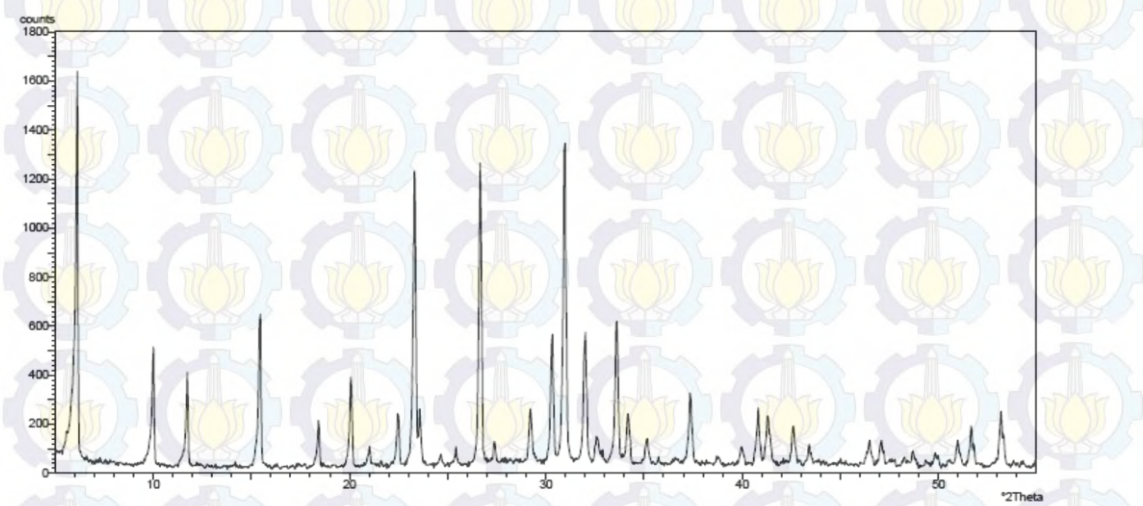
Gambar C.2 Difraktogram ZXF90-96J (90°C, 96 jam)



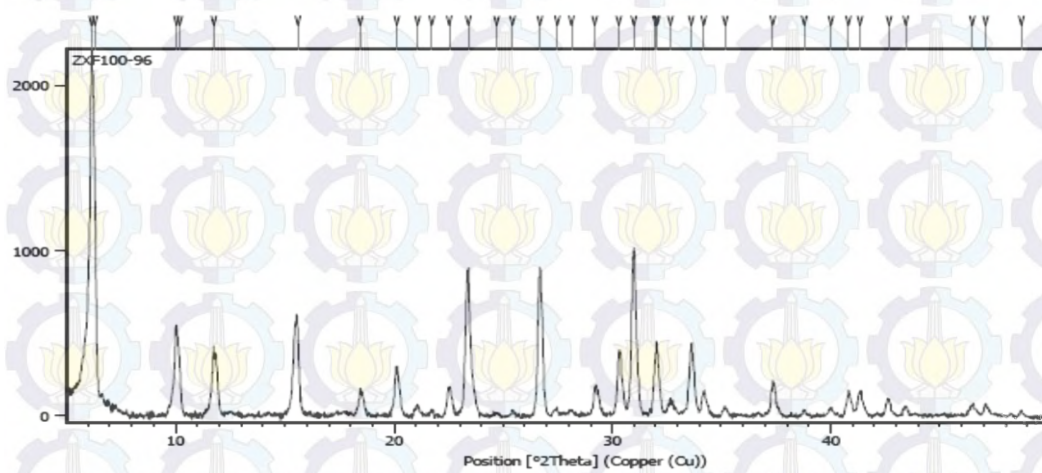
Gambar C.3 Difraktogram ZXF90-120J (90°C, 120 jam)



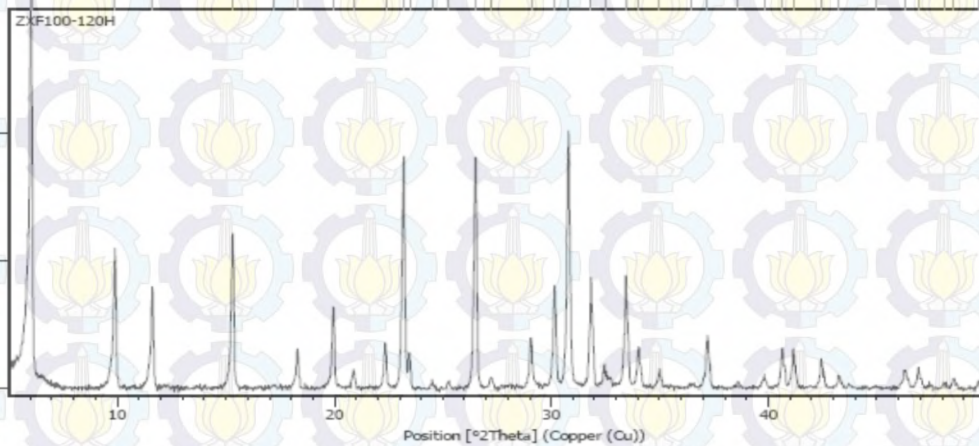
Gambar C.4 Difraktogram ZXF90-144J (90°C, 144 jam)



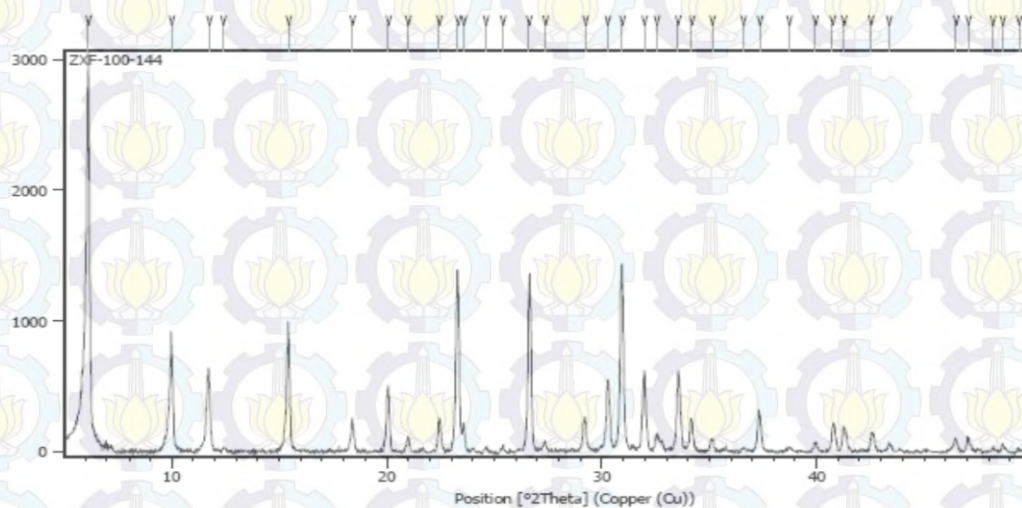
Gambar C.5 Difraktogram ZXF100-72J (100°C, 72 jam)



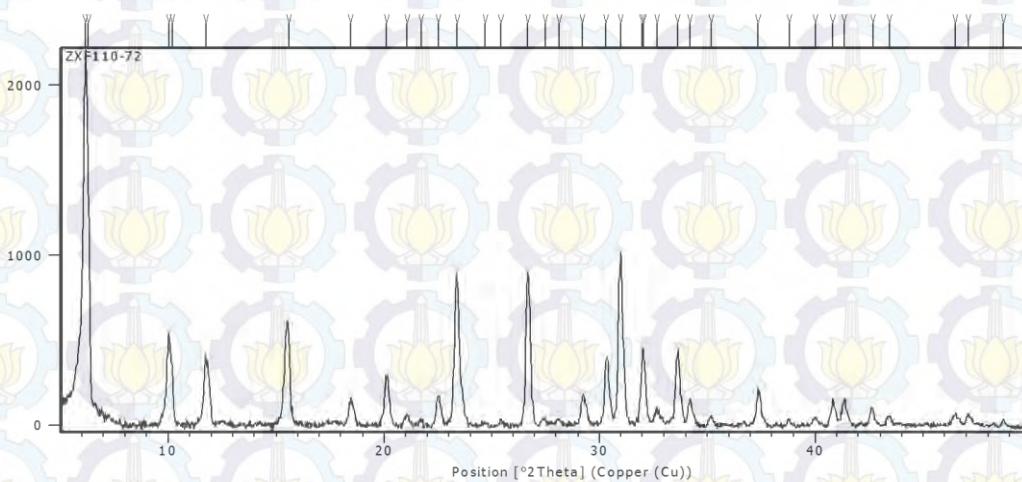
Gambar C.6 Difraktogram ZXF100-96J (100°C, 96 jam)



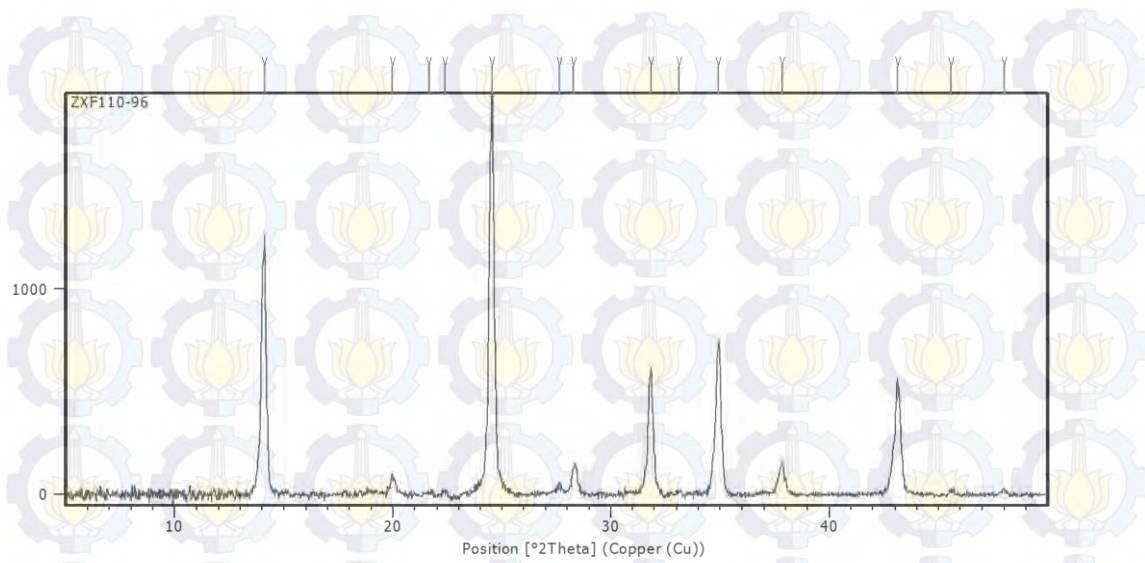
Gambar C.7 Difraktogram ZXF100-120J (100°C, 120 jam)



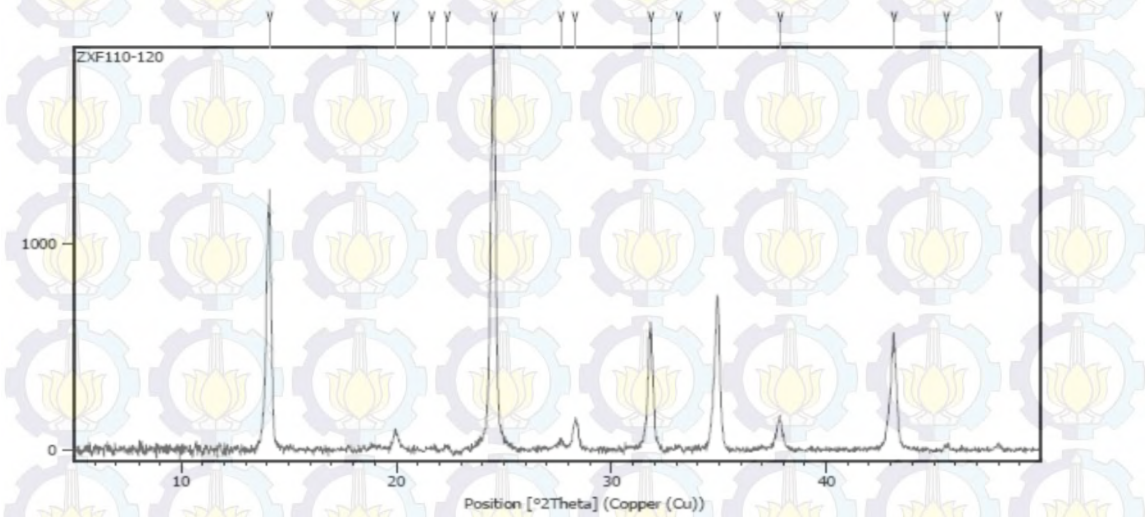
Gambar C.8 Difraktogram ZXF100-144J (100°C, 144 jam)



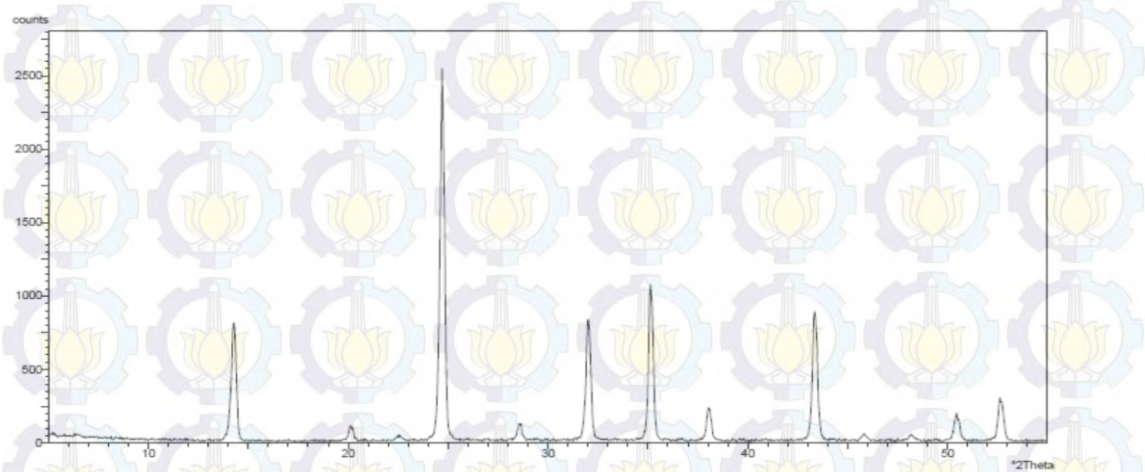
Gambar C.9 Difraktogram ZXF110-72J (110°C, 72 jam)



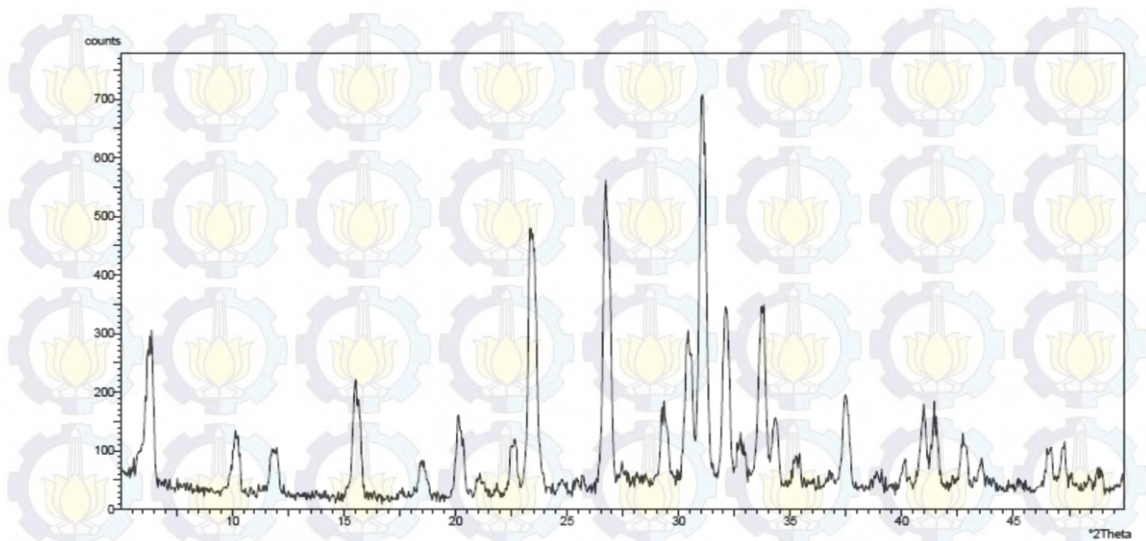
Gambar C.10 Difraktogram ZXF110-96J (110°C, 96 jam)



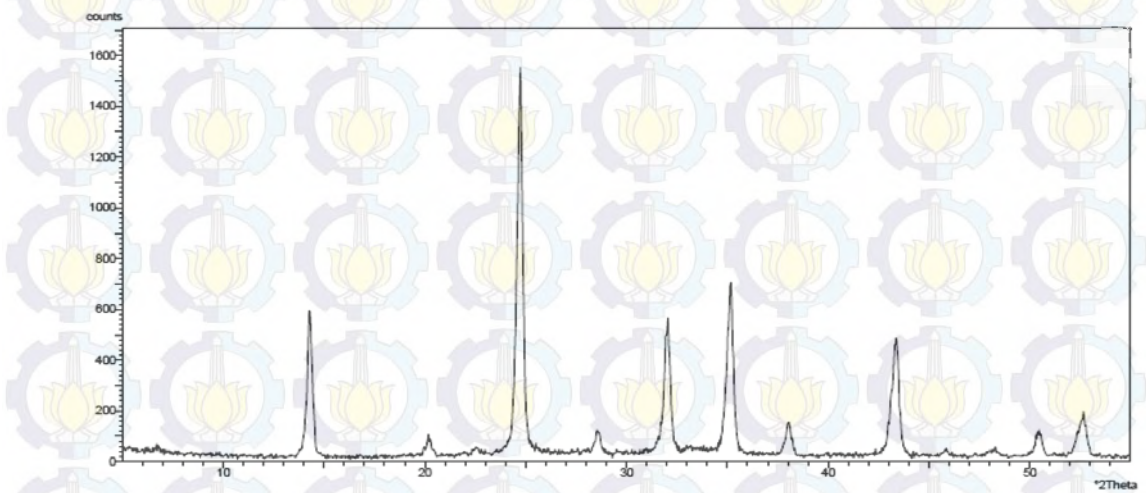
Gambar C.11 Difraktogram ZXF110-120J (110°C, 120 jam)



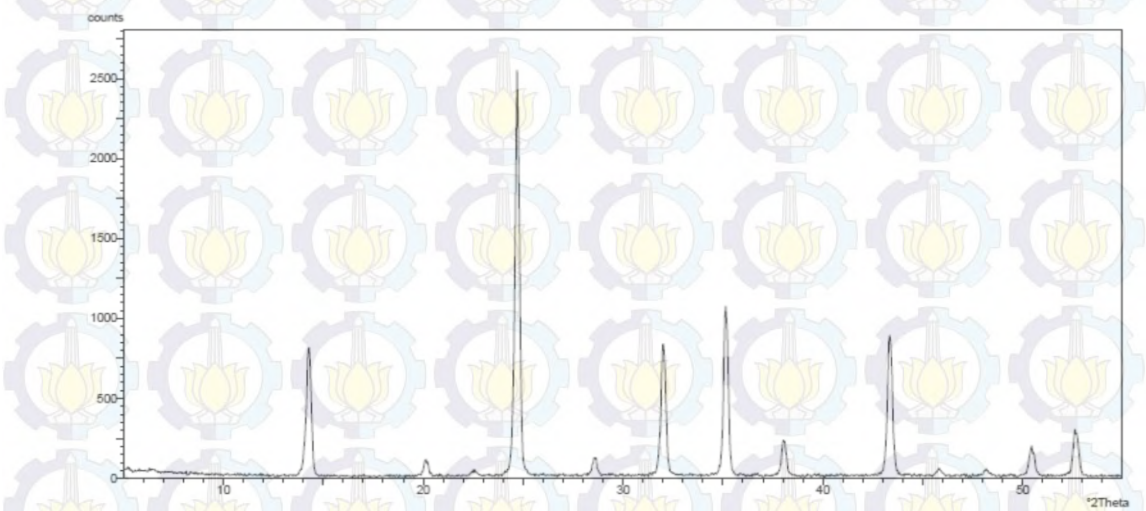
Gambar C.12 Difraktogram ZXF110-144J (110°C, 144 jam)



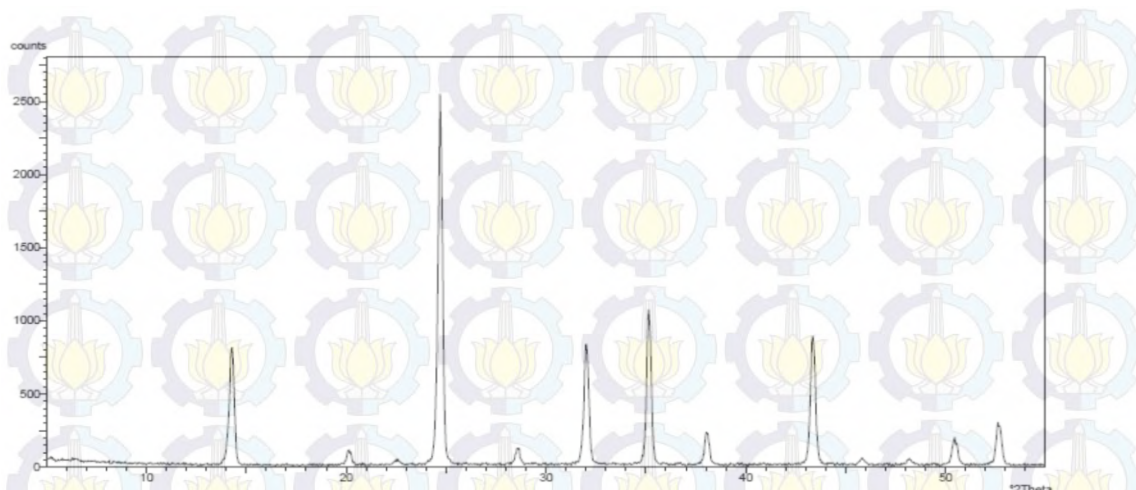
Gambar C.13 Difraktogram ZXF120-72J (120°C, 72 jam)



Gambar C.14 Difraktogram ZXF120-72J (120°C, 96 jam)



Gambar C.15 Difraktogram ZXF120-120J (120°C, 120 jam)



Gambar C.16 Difraktogram ZXF120-72J (120°C, 72 jam)

2. Kristalinitas relatif

- Prosentase kristalinitas relatif dihitung dengan membandingkan intensitas puncak-puncak khas zeolit X berpendukung material serat (ZXS) terhadap zeolit X tanpa serat (ZX) :

$$\% \text{ kristalinitas relatif} = \frac{\sum \text{Intensitas relatif zeolit X serat}}{\sum \text{intensitas relatif zeolit X}} \times 100\%$$

\sum intensitas relatif zeolit X

Tabel C1. Perhitungan kristalinitas relatif

2 tetha sampel	6.1	9.9	11.7	15.5	23.3	26.6	30.9	Jumlah	Kristalinitas (%)
Zeolit X	4838	1296	955	1260	1707	1692	1748	13496	100
ZXF-90C72J	1369	408	372	595	1170	1225	1406	6545	48.4959
ZXF-90C96J	1391	400	339	600	1197	1304	1476	6707	49.6962
ZXF-90C120J	1475	518	498	820	1149	1292	1159	6911	51.2078
ZXF-90C144J	445	166	159	279	576	586	734	2945	21.8213
ZXF-100C72J	1640	515	412	650	1232	1267	1347	7063	52.334
ZXF-100C96J	2330	670	500	734	950	960	1067	7211	53.4306
ZXF-100C120J	3038	1209	964	1200	1763	1744	1980	11898	88.1595
ZXF-100C144J	3165	1058	777	1138	1518	1448	1564	10668	79.0456
ZXF-110C72J	2434	691	557	734	999	980	1114	7509	55.6387
ZXF-110C96J	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ZXF-110C120J	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ZXF-110C144J	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ZXF-120C72J	1334	571	400	600	850	770	914	5439	40.3008
ZXF-110C96J	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ZXF-110C120J	0	0	0	0	0	0	0	0	0
ZXF-110C144J	0	0	0	0	0	0	0	0	0

LAMPIRAN D : ANALISIS ANOVA

1. Uji Asumsi ANOVA

▪ Uji Shapiro-Wilk (Uji Normalitas)

H_0 = Data kristalinitas relatif berdistribusi normal

H_1 = Data kristalinitas relatif tidak berdistribusi normal

$$\bar{X} = 33,758$$

Tabel D.1 Perhitungan data kristalinitas

No.	X_i	$(X_i - \bar{X})$	$(X_i - \bar{X})^2$
1	0	-33,758	1139,613
2	0	-33,758	1139,613
3	0	-33,758	1139,613
4	0	-33,758	1139,613
5	0	-33,758	1139,613
6	0	-33,758	1139,613
7	21,821	-11,937	142,4889
8	40,301	6,54268	42,80665
9	48,496	14,7377	217,1998
10	49,696	15,9381	254,0216
11	51,208	17,4496	304,4891
12	52,334	18,5759	345,0631
13	53,431	19,6725	387,0071
14	55,639	21,8806	478,7588
15	79,046	45,2875	2050,957
16	88,160	54,4013	2959,502
Jumlah (D)			14019,97

Tabel D.2 Uji Shapiro-Wilk

i	a_i	$X_{n-i+1} - X_i$	$a_i (X_{n-i+1} - X_i)$
1	0,5056	$X_{16} - X_1 = 88,16$	48,98139
2	0,329	$X_{15} - X_2 = 79,05$	26,00602
3	0,2521	$X_{14} - X_3 = 55,64$	14,02652
4	0,1939	$X_{13} - X_4 = 53,43$	10,3602
5	0,1447	$X_{12} - X_5 = 52,33$	7,572733
6	0,1005	$X_{11} - X_6 = 51,21$	5,14638
7	0,0593	$X_{10} - X_7 = 27,87$	1,652983
8	0,0196	$X_9 - X_8 = 8,195$	0,160622
Jumlah			113,9068

$$W = \frac{1}{D} \left[\sum_{i=1}^k a_i (X_{n-i+1} - X_i) \right]^2$$

$$= \frac{1}{14019,97} (113,9068)^2 = 0,926$$

Nilai $W >$ Nilai $W_{0,05}$ pada tabel Shapiro-Wilk = $0,926 > 0,887$

Maka, H_0 diterima dan data memiliki distribusi normal

▪ Uji Bartlett (Uji Homogenitas)

Tabel D.3 Pengelompokan data

Suhu (°C)	90	100	110	120
Waktu (jam)	1	2	3	4
72	48,49585	52,33402	55,63871	40,30083
96	49,69621	53,43065	0	0
120	51,20777	88,15945	0	0
144	21,82128	79,04564	0	0
Rata-rata	42,80528	68,24244	13,90968	10,07521

Tabel D.4 Varians masing-masing kelompok

	S_1^2	S_2^2	S_3^2	S_4^2
	10,79421455	84,35925	580,4373378	304,5294
	15,82830839	73,12977	64,49303754	33,8366
	23,53394397	132,2291	64,49303754	33,8366
	146,776019	38,90305	64,49303754	33,8366
Jumlah	196,9324859	328,6212	773,9164504	406,0392

Tabel D.5 Uji Bartlett

Kelompok	df	1/df	S_i^2	$\log S_i^2$	df ($\log S_i^2$)
S_1^2	3	0,333333	196,9325	2,294317	6,882952089
S_2^2	3	0,333333	328,6212	2,516696	7,550086705
S_3^2	3	0,333333	773,9165	2,888694	8,666082234
S_4^2	3	0,333333	406,0392	2,608568	7,825703961
Jumlah	12	1,333333			30,92482499

$$H_0 = S_1^2 = S_2^2 = S_3^2 = S_4^2$$

$$H_1 = S_1^2 \neq S_2^2 \neq S_3^2 \neq S_4^2$$

$$S^2 \text{ gabungan} = \frac{(3 \times 196,9325) + (3 \times 328,6212) + (3 \times 773,9165) + (3 \times 406,0392)}{3+3+3+3}$$

$$= 426,3773$$

$$\log S^2 \text{ gabungan} = 2,6297$$

$$B = \log S^2 (\sum n_i - 1) = 2,6297 \times 12 = 31,5575$$

$$X^2 = (\ln 10) \{B - \sum (n_i - 1) \log S_i^2\} = (2,3026) (31,5575 - 30,9248)$$

$$= 1,4569$$

Dari tabel distribusi chi kuadrat untuk $\alpha = 0,05$ pada $df = 3$, nilai $X^2 = 7,81$

Dari hasil perhitungan, didapatkan nilai $X^2 = 1,4569$, sehingga $X^2_{hitung} < X^2_{tabel}$

Maka H_0 diterima dan data memiliki homogenitas.

2. Analisis ANOVA dua arah tanpa pengulangan

Hasil analisis ANOVA dua arah menggunakan software Excel, diperoleh data sebagai berikut :

Tabel D.6 Pengelompokan data kristalinitas

Suhu	90	100	110	120
Waktu				
72	48,49585	52,33402	55,63871	40,30083
96	49,69621	53,43065	0	0
120	51,20777	88,15945	0	0
144	21,82128	79,04564	0	0
Rata-rata	42,80528	68,24244	13,90968	10,07521

- Hipotesis ANOVA baris (waktu hidrotermal) :

$H_0 : W_{72} = W_{96} = W_{120} = W_{144}$, tidak ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi waktu hidrotermal

$H_1 : W_{72} \neq W_{96} \neq W_{120} \neq W_{144}$, ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi waktu hidrotermal

- Hipotesis ANOVA kolom (suhu hidrotermal) :

$H_0 : S_{90} = S_{100} = S_{110} = S_{120}$, tidak ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi suhu hidrotermal

$H_1 : S_{90} \neq S_{100} \neq S_{110} \neq S_{120}$, ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi suhu hidrotermal

Tabel D.7 Perhitungan varians

<i>SUMMARY</i>	<i>Count</i>	<i>Sum</i>	<i>Average</i>	<i>Variance</i>
Row 1	4	196.7694	49.19235	43.65663
Row 2	4	103.1269	25.78171	888.5866
Row 3	4	139.3672	34.8418	1846.173
Row 4	4	100.8669	25.21673	1393.616
Column 1	4	171.2211	42.80528	196.9325
Column 2	4	272.9698	68.24244	328.6212
Column 3	4	55.63871	13.90968	773.9165
Column 4	4	40.30083	10.07521	406.0392

Tabel D.8 ANOVA-Dua arah tanpa pengulangan

ANOVA						
<i>Source of Variation</i>	<i>SS</i>	<i>df</i>	<i>MS</i>	<i>F</i>	<i>P-value</i>	<i>F crit</i>
Rows	1503.873	3	501.2911	1.248838	0.348523	3.862548
Columns	8903.442	3	2967.814	7.393545	0.008428	3.862548
Error	3612.655	9	401.4061			
Total	14019.97	15				

Kesimpulan :

ANOVA baris :

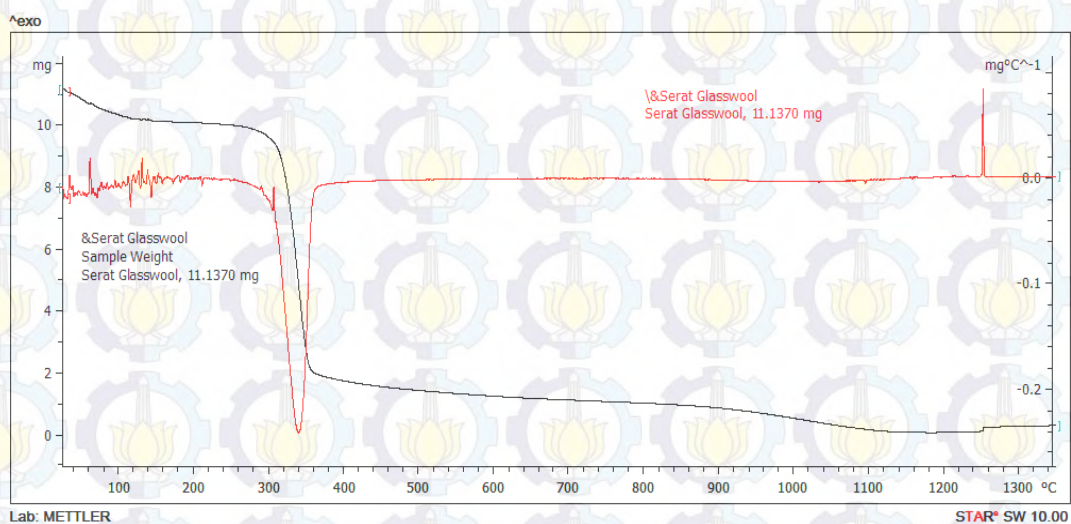
$F_{hit} < F_{kritis}$, maka H_0 diterima, tidak ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi waktu hidrotermal.

ANOVA kolom :

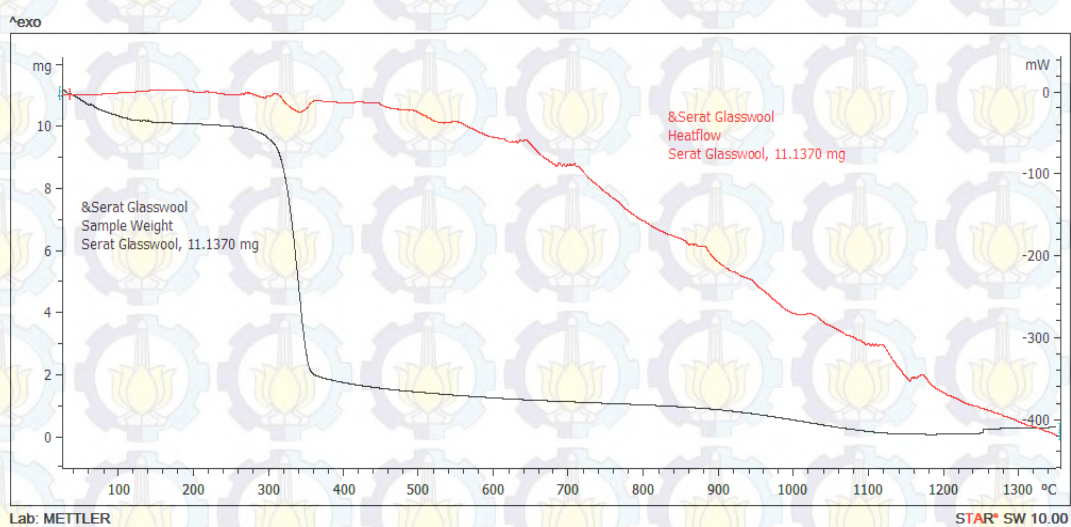
$F_{hit} > F_{kritis}$, maka H_0 ditolak, ada perbedaan kristalinitas yang signifikan pada variasi suhu hidrotermal.

LAMPIRAN E : DATA TGA-DSC

1. Serat *Glasswool*

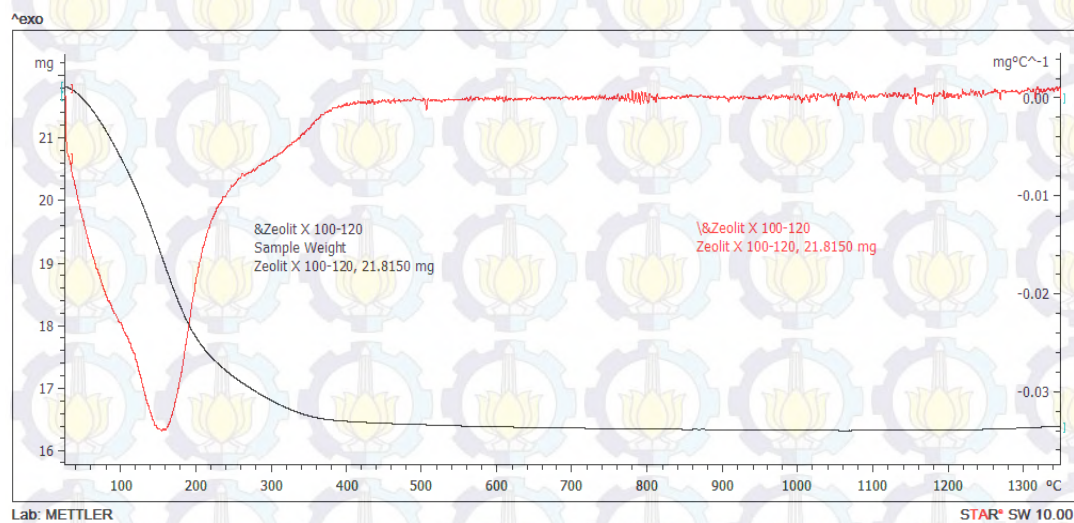


Gambar E.1 Grafik TGA-DTG *glasswool*

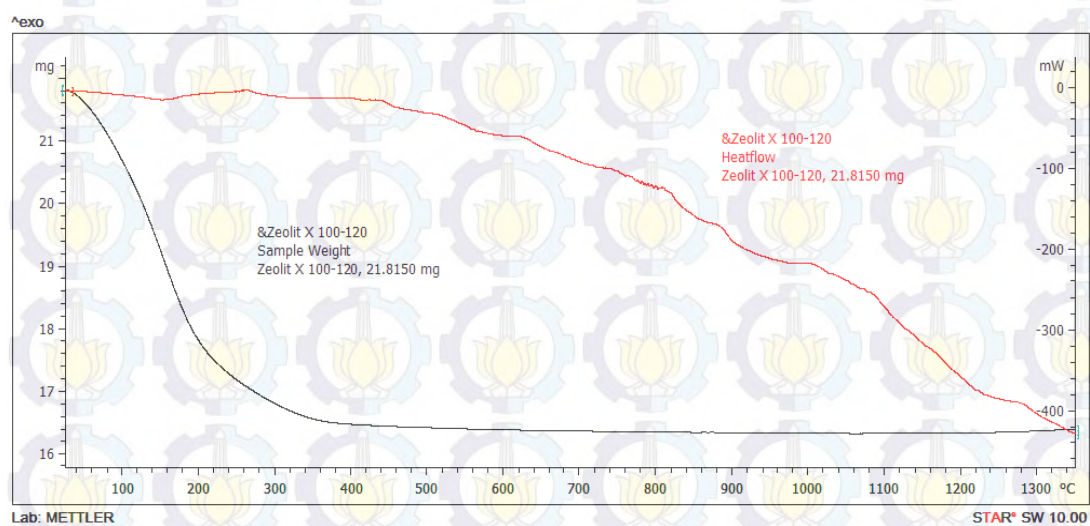


Gambar E.2 Grafik TGA-DSC *glasswool*

2. Zeolit-X

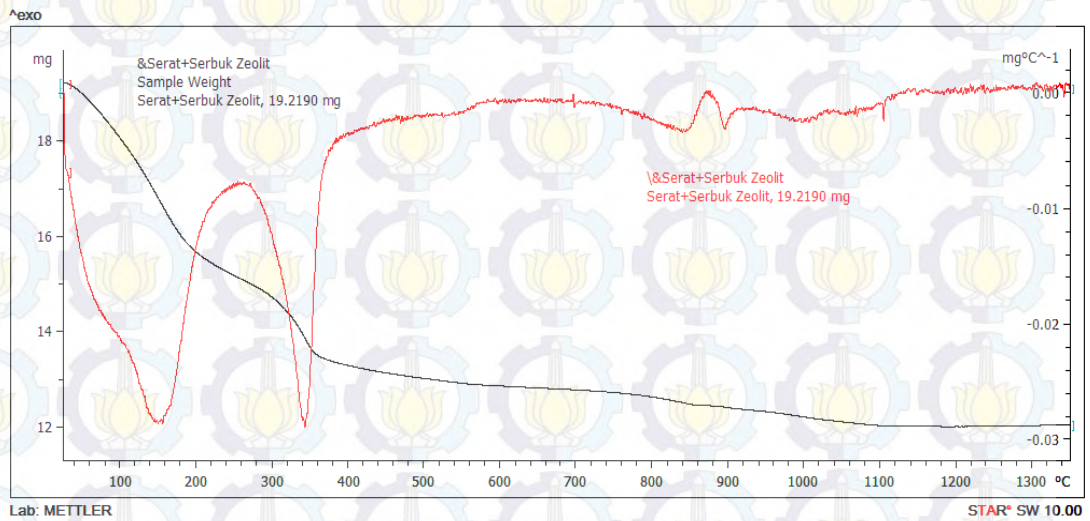


Gambar E.3 Grafik TGA-DTG zeolit-X

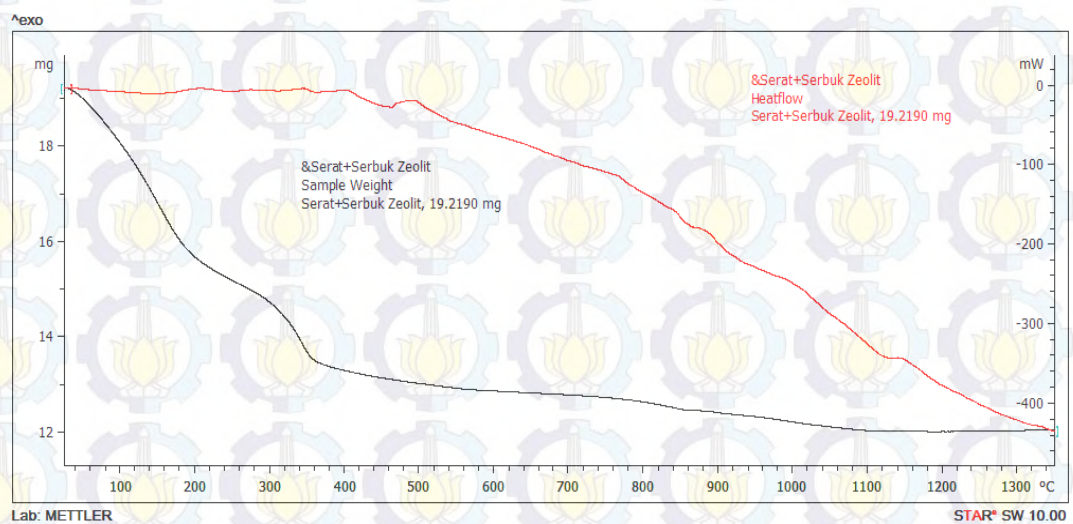


Gambar E.4 Grafik TGA-DSC zeolit-X

3. Zeolit-X berpendukung serat *glasswool*



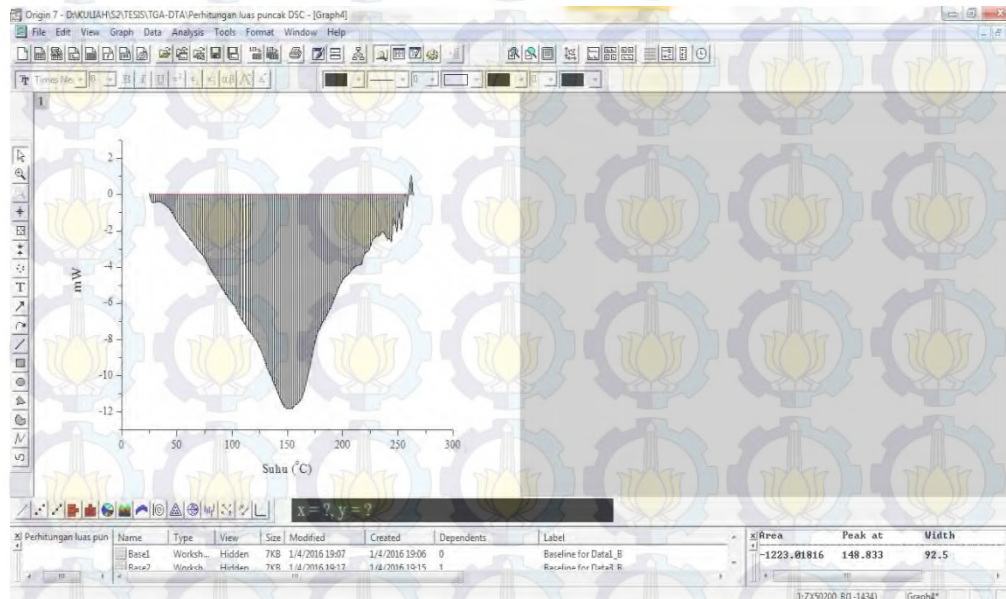
Gambar E.5 Grafik TGA-DTG ZXF100-120J



Gambar E.6 Grafik TGA-DSC ZXF100-120J

LAMPIRAN F : INTEGRASI LUAS PUNCAK DSC

1. Zeolit X



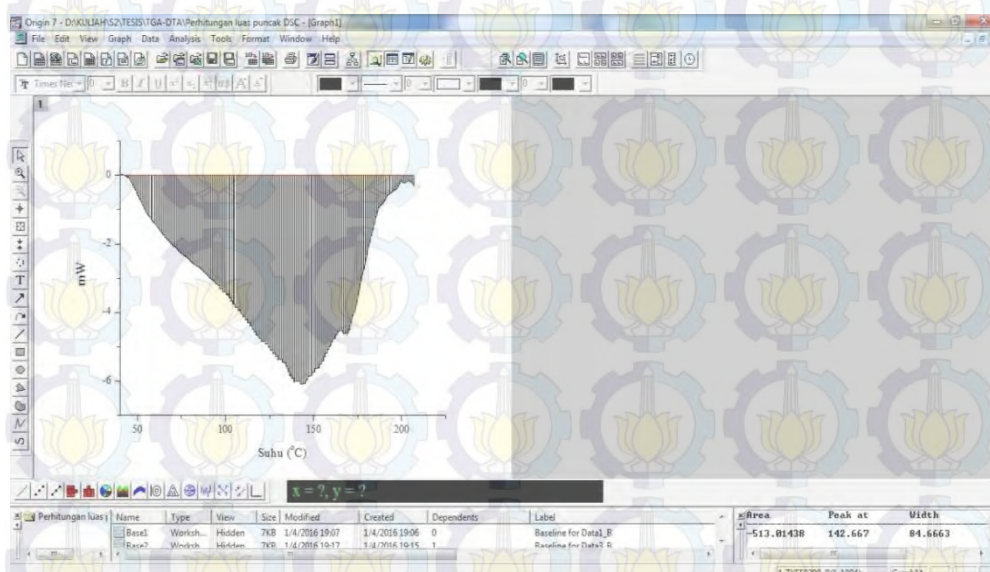
Gambar F.1 *Screenshoot* integrasi luas puncak DSC zeolit-X

Luas area integrasi = 1223 mW °C/mg s

Laju aliran panas = 10°C/min = 10°C/60 s

$$\text{Entalpi} = \frac{1223 \text{ mW } ^\circ\text{C/mg s}}{10^\circ\text{C}/60 \text{ s}} = 7338 \text{ mW/mg} = 7338 \text{ J/g} = 7,34 \text{ kJ/g}$$

2. ZXF100-120J

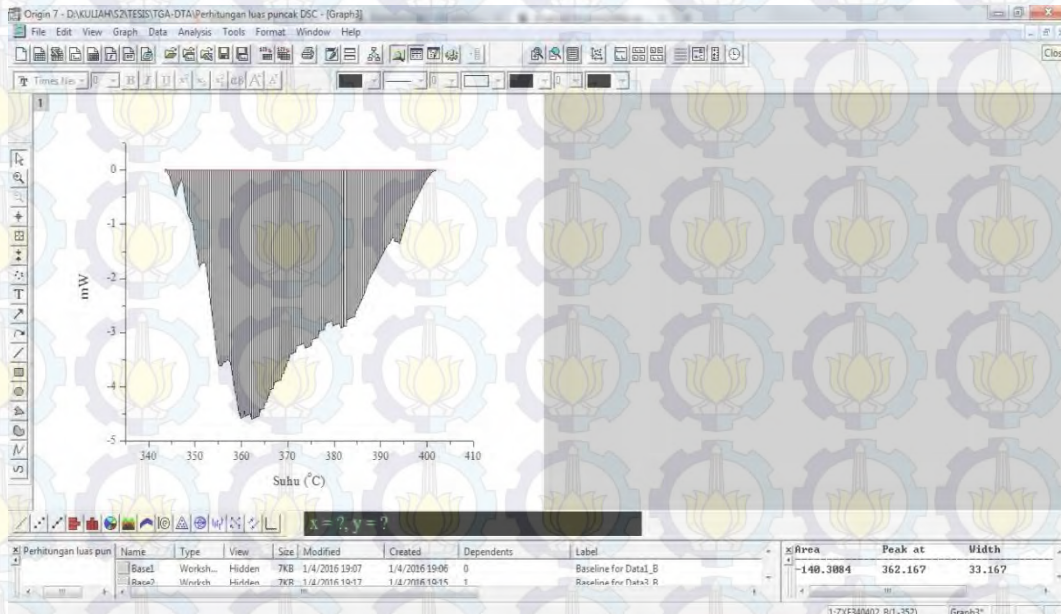


Gambar F.2 *Screenshoot* integrasi luas puncak DSC ZXF suhu 50°C -200°C

Luas area integrasi = 513 mW °C/mg s

Laju aliran panas = 10°C/min = 10°C/60 s

$$\text{Entalpi} = \frac{513 \text{ mW } ^\circ\text{C/mg s}}{10^\circ\text{C}/60 \text{ s}} = 3078 \text{ mW/mg} = 3078 \text{ J/g} = 3,08 \text{ kJ/g}$$



Gambar F.3 Screenshoot integrasi luas puncak DSC ZXF suhu 340°C -400°C

Luas area integrasi = 140 mW °C/mg s

Laju aliran panas = 10°C/min = 10°C/60 s

$$\text{Entalpi} = \frac{140 \text{ mW } ^\circ\text{C/mg s}}{10^\circ\text{C}/60 \text{ s}} = 840 \text{ mW/mg} = 840 \text{ J/g} = 0,84 \text{ kJ/g}$$

LAMPIRAN G : PERHITUNGAN KAPASITAS ADSORPSI CO₂

1. Cara perhitungan kapasitas adsorpsi karbon dioksida secara gravimetri

- Kapasitas adsorpsi CO₂ (% berat) :

$$\% \text{ Berat CO}_2 = \frac{\Delta m}{m'_0} \times 100\%$$

Keterangan :

m_0 = massa sampel + holder pada menit ke-0

m_t = massa sampel + holder pada menit ke-t

m'_0 = massa adsorben

$$\Delta m = m_t - m_0$$

Contoh :

$$m_0 = 16,279 \text{ g}$$

$$m_{t1} = 16,322 \text{ g}$$

$$\Delta m = m_{t5} - m_0 = 16,279 - 16,322 = 0,043 \text{ g}$$

$$\% \text{ Berat CO}_2 (t=5 \text{ menit}) = \frac{0,043}{1,2660} \times 100\% = 3,397 \%$$

Untuk selanjutnya, perhitungan dilakukan hingga m_t mencapai setimbang. Hasil dapat dilihat perhitungan no. 2-4

2. Kapasitas Adsorpsi CO₂ pada ZXF100-120J Suhu 30°C

Aliran gas CO₂ = 20 mL/menit

Massa holder = 15,013 gram

Massa sampel = 1,2660 gram

Tekanan luar = 1 bar

Tekanan kesetimbangan = 0,75 bar

Tabel G.1 Hasil perhitungan kapasitas adsorpsi CO₂ suhu 30°C

t (min)	Berat sampel + holder	Δm (g)	% berat
0	16,279	0,000	0,000
1	16,322	0,043	3,397
2	16,345	0,066	5,213
3	16,369	0,09	7,109
4	16,388	0,109	8,610
5	16,396	0,117	9,242
6	16,405	0,126	9,953
7	16,418	0,139	10,979
8	16,437	0,158	12,480
9	16,444	0,165	13,033
10	16,452	0,173	13,665
11	16,466	0,187	14,771
12	16,477	0,198	15,640
13	16,484	0,205	16,193
14	16,495	0,216	17,062
15	16,504	0,225	17,773
16	16,52	0,241	19,036
17	16,548	0,269	21,248
18	16,552	0,273	21,564
19	16,567	0,288	22,749
20	16,577	0,298	23,539
21	16,584	0,305	24,092
22	16,588	0,309	24,408
23	16,591	0,312	24,645
24	16,591	0,312	24,645
25	16,591	0,312	24,645

3. Kapasitas Adsorpsi CO₂ pada ZXF100-120J Suhu 40°C

Aliran gas CO₂ = 20 mL/menit

Massa holder = 15,103 gram

Massa sampel = 1,1540 gram

Tekanan luar = 1 bar

Tekanan kesetimbangan = 0,80 bar

Tabel G.2 Hasil perhitungan kapasitas adsorpsi CO₂ suhu 40°C

t (min)	Berat sampel + holder	Δm (g)	% berat
0	16,257	0,000	0,000
1	16,274	0,047	4,073
2	16,374	0,08	6,932
3	16,388	0,114	9,879
4	16,392	0,117	10,139
5	16,392	0,131	11,352
6	16,393	0,135	11,698
7	16,395	0,135	11,698
8	16,395	0,138	11,958
9	16,396	0,139	12,045
10	16,396	0,141	12,218
11	16,398	0,143	12,392
12	16,403	0,146	12,652
13	16,403	0,146	12,652
14	16,407	0,150	12,998
15	16,409	0,152	13,172
16	16,41	0,153	13,258
17	16,411	0,154	13,345
18	16,411	0,156	13,518
19	16,413	0,163	13,518
20	16,413	0,177	14,125
21	16,434	0,177	15,338
22	16,434	0,177	15,338
23	16,434	0,177	15,338

4. Kapasitas Adsorpsi CO₂ pada ZXF100-120J Suhu 50°C

Aliran gas CO₂ = 20 mL/menit

Massa holder = 15,103 gram

Massa sampel = 1,1540 gram

Tekanan luar = 1 bar

Tekanan kesetimbangan = 0,85 bar

Tabel G.3 Hasil perhitungan kapasitas adsorpsi CO₂ suhu 50°C

t (min)	Berat sampel + holder	Δm (g)	% berat
0	16,257	0,000	0,000
1	16,289	0,032	2,773
2	16,303	0,046	3,986
3	16,307	0,050	4,333
4	16,325	0,068	5,893
5	16,34	0,083	7,192
6	16,347	0,090	7,799
7	16,2684	0,114	9,879
8	16,377	0,120	10,399
9	16,379	0,122	10,572
10	16,379	0,122	10,572
11	16,382	0,125	10,832
12	16,386	0,129	11,179
13	16,39	0,133	11,525
14	16,392	0,135	11,698
15	16,395	0,138	11,958
16	16,397	0,140	12,132
17	16,4	0,143	12,392
18	16,4	0,143	12,392
19	16,401	0,144	12,478
20	16,401	0,144	12,478
21	16,401	0,144	12,478
22	16,401	0,144	12,478

LAMPIRAN H : PERHITUNGAN KAPASITAS DESORPSI CO₂

1. Cara perhitungan kapasitas Desorpsi karbon dioksida secara gravimetri

- Kapasitas adsorpsi CO₂ (% berat) :

$$\% \text{ Berat CO}_2 = \frac{\Delta m}{m'_0} \times 100\%$$

Keterangan :

m_0 = massa sampel + holder pada saat setimbang

m_t = massa sampel + holder pada menit ke-t

m'_0 = massa CO₂ di material

$$\Delta m = m_0 - m_t$$

Contoh :

$$m_0 = 16,591 \text{ g}$$

$$m_{t1} = 16,561 \text{ g}$$

$$\Delta m = m_{t5} - m_0 = 16,591 - 16,561 = 0,03 \text{ g}$$

$$\% \text{ Berat CO}_2 \text{ terdesorp (t=1 menit)} = \frac{0,03}{0,312} \times 100\% = 9,62 \%$$

$$\% \text{ Berat sisa CO}_2 \text{ di material} = 100\% - 9,62\% = 90,38\%$$

Untuk selanjutnya, perhitungan dilakukan hingga m_t mencapai setimbang. Hasil dapat dilihat perhitungan no. 2-4

2. Kapasitas Desorpsi CO₂ pada ZXF100-120J Suhu 30°C

Aliran gas CO₂ = 20 mL/menit

Massa holder = 15,013 gram

Massa sampel = 1,2660 gram

Tekanan luar = 1 bar

Tabel H.1 Hasil perhitungan kapasitas desorpsi CO₂ suhu 30°C

t (menit)	Berat CO ₂ di material (g)	Δm (g)	% berat CO ₂ terdesorp	% berat sisa CO ₂ di material
0	0,312	0	0	100
1	0,282	0,03	9,6154	90,385
2	0,246	0,066	21,154	78,846
3	0,243	0,069	22,115	77,885
4	0,237	0,075	24,038	75,962
5	0,228	0,084	26,923	73,077
6	0,215	0,097	31,09	68,91
7	0,208	0,104	33,333	66,667
8	0,203	0,109	34,936	65,064
9	0,194	0,118	37,821	62,179
10	0,183	0,129	41,346	58,654
11	0,173	0,139	44,551	55,449
12	0,161	0,151	48,397	51,603
13	0,15	0,162	51,923	48,077
14	0,138	0,174	55,769	44,231
15	0,129	0,183	58,654	41,346
16	0,117	0,195	62,5	37,5
17	0,11	0,202	64,744	35,256
18	0,108	0,204	65,385	34,615
19	0,098	0,214	68,59	31,41
20	0,094	0,218	69,872	30,128
21	0,087	0,225	72,115	27,885
22	0,08	0,232	74,359	25,641
23	0,077	0,235	75,321	24,679
24	0,076	0,236	75,641	24,359
25	0,073	0,239	76,603	23,397
26	0,073	0,239	76,603	23,397
27	0,073	0,239	76,603	23,397

3. Kapasitas Desorpsi CO₂ pada ZXF100-120J Suhu 40°C

Aliran gas CO₂ = 20 mL/menit

Massa holder = 15,103 gram

Massa sampel = 1,1540 gram

Tekanan luar = 1 bar

Tabel H.2 Hasil perhitungan kapasitas desorpsi CO₂ suhu 40°C

t (menit)	Berat CO ₂ di material (g)	Δm (g)	% berat CO ₂ terdesorp	% berat sisa CO ₂ di material
0	0,177	0	0	100
1	0,151	0,026	14,689	85,311
2	0,127	0,05	28,249	71,751
3	0,123	0,054	30,508	69,492
4	0,115	0,062	35,028	64,972
5	0,108	0,069	38,983	61,017
6	0,107	0,07	39,548	60,452
7	0,102	0,075	42,373	57,627
8	0,095	0,082	46,328	53,672
9	0,094	0,083	46,893	53,107
10	0,09	0,087	49,153	50,847
11	0,082	0,095	53,672	46,328
12	0,08	0,097	54,802	45,198
13	0,079	0,098	55,367	44,633
14	0,07	0,107	60,452	39,548
15	0,059	0,118	66,667	33,333
16	0,053	0,124	70,056	29,944
17	0,048	0,129	72,881	27,119
18	0,029	0,148	83,616	16,384
19	0,029	0,148	83,616	16,384
20	0,029	0,148	83,616	16,384

4. Kapasitas Desorpsi CO₂ pada ZXF100-120J Suhu 50°C

Aliran gas CO₂ = 20 mL/menit

Massa holder = 15,103 gram

Massa sampel = 1,1540 gram

Tekanan luar = 1 bar

Tabel H.3 Hasil perhitungan kapasitas desorpsi CO₂ suhu 50°C

t (menit)	Berat CO ₂ di material (g)	Δm (g)	% berat CO ₂ terdesorp	% berat sisa CO ₂ di material
0	0,144	0	0	100
1	0,104	0,04	27,778	72,222
2	0,096	0,048	33,333	66,667
3	0,086	0,058	40,278	59,722
4	0,081	0,063	43,75	56,25
5	0,078	0,066	45,833	54,167
6	0,071	0,073	50,694	49,306
7	0,057	0,087	60,417	39,583
8	0,052	0,092	63,889	36,111
9	0,041	0,103	71,528	28,472
10	0,035	0,109	75,694	24,306
11	0,029	0,115	79,861	20,139
12	0,015	0,129	89,583	10,417
13	0,015	0,129	89,583	10,417
14	0,015	0,129	89,583	10,417

LAMPIRAN I : ANALISA DATA MODEL KINETIKA ADSORPSI

1. Model orde satu semu

Model orde satu semu dapat ditentukan dengan melakukan plot linear antara $\ln(q_e - q_t)$ sebagai sumbu y dan t sebagai sumbu x dari bentuk persamaan berikut.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t$$

Keterangan :

q_e : kapasitas adsorpsi pada saat kesetimbangan (mmol/g)

q_t : kapasitas adsorpsi saat waktu ke- t (mmol/g)

t : waktu adsorpsi (menit)

k_1 : konstanta orde satu semu (menit^{-1})

Tabel I.1 Hasil perhitungan orde satu semu pada suhu 30°C

t	q_e (mmol/g)	q_t (mmol/g)	$(q_e - q_t)$	$\ln(q_e - q_t)$
0	5,601034	0,000000	5,601034	1,722951
1	5,601034	0,771937	4,829097	1,574659
2	5,601034	1,184834	4,416200	1,485280
3	5,601034	1,615683	3,985351	1,382625
4	5,601034	1,956772	3,644263	1,293154
5	5,601034	2,100388	3,500646	1,252948
6	5,601034	2,261956	3,339078	1,205695
7	5,601034	2,495332	3,105702	1,133240
8	5,601034	2,836421	2,764613	1,016901
9	5,601034	2,962085	2,638949	0,970381
10	5,601034	3,105702	2,495332	0,914422
11	5,601034	3,357030	2,244004	0,808262
12	5,601034	3,554502	2,046532	0,716146
13	5,601034	3,680167	1,920867	0,652777
14	5,601034	3,877639	1,723395	0,544296
15	5,601034	4,039207	1,561827	0,445856
16	5,601034	4,326440	1,274594	0,242628
17	5,601034	4,829097	0,771937	-0,258852
18	5,601034	4,900905	0,700129	-0,356490
19	5,601034	5,170185	0,430849	-0,841998
20	5,601034	5,349706	0,251328	-1,380995
21	5,601034	5,475370	0,125664	-2,074142
22	5,601034	5,547178	0,053856	-2,921440
23	5,601034	5,601034	0,000000	#NUM!
24	5,601034	5,601034	0,000000	#NUM!
25	5,601034	5,601034	0,000000	#NUM!

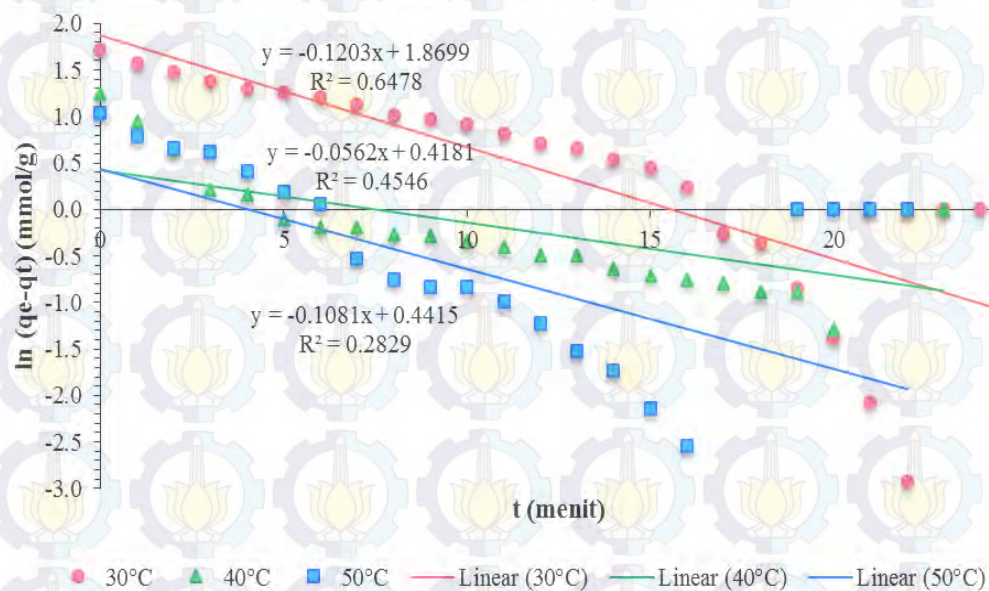
Tabel I.2 Hasil perhitungan orde satu semu pada suhu 40°C

t	q _e (mmol/g)	q _t (mmol/g)	(q _e -q _t)	ln (q _e -q _t)
0	3,485899	0,000000	3,485899	1,248726
1	3,485899	0,925634	2,560265	0,940111
2	3,485899	1,575548	1,910351	0,647287
3	3,485899	2,245155	1,240744	0,215711
4	3,485899	2,304238	1,181661	0,166921
5	3,485899	2,579959	0,905940	-0,098782
6	3,485899	2,658736	0,827162	-0,189754
7	3,485899	2,658736	0,827162	-0,189754
8	3,485899	2,717819	0,768079	-0,263862
9	3,485899	2,737514	0,748385	-0,289838
10	3,485899	2,776902	0,708996	-0,343905
11	3,485899	2,816291	0,669608	-0,401063
12	3,485899	2,875374	0,610525	-0,493437
13	3,485899	2,875374	0,610525	-0,493437
14	3,485899	2,954152	0,531747	-0,631587
15	3,485899	2,993540	0,492359	-0,708548
16	3,485899	3,013235	0,472664	-0,749370
17	3,485899	3,032929	0,452970	-0,791930
18	3,485899	3,072318	0,413581	-0,882901
19	3,485899	3,072318	0,413581	-0,882901
20	3,485899	3,210178	0,275721	-1,288366
21	3,485899	3,485899	0,000000	#NUM!
22	3,485899	3,485899	0,000000	#NUM!
23	3,485899	3,485899	0,000000	#NUM!

Tabel I.3 Hasil perhitungan orde satu semu pada suhu 50°C

t	q _e (mmol/g)	q _t (mmol/g)	(q _e -q _t)	ln (q _e -q _t)
0	2,835986	0,000000	2,835986	1,042389
1	2,835986	0,630219	2,205767	0,791075
2	2,835986	0,905940	1,930046	0,657544
3	2,835986	0,984717	1,851268	0,615871
4	2,835986	1,339215	1,496770	0,403310
5	2,835986	1,634631	1,201355	0,183450
6	2,835986	1,772491	1,063495	0,061560
7	2,835986	2,245155	0,590830	-0,526226
8	2,835986	2,363321	0,472664	-0,749370
9	2,835986	2,402710	0,433276	-0,836381
10	2,835986	2,402710	0,433276	-0,836381
11	2,835986	2,461793	0,374193	-0,982985

12	2,835986	2,540570	0,295415	-1,219374
13	2,835986	2,619348	0,216638	-1,529529
14	2,835986	2,658736	0,177249	-1,730199
15	2,835986	2,717819	0,118166	-2,135664
16	2,835986	2,757208	0,078777	-2,541129
17	2,835986	2,816291	0,019694	-3,927424
18	2,835986	2,816291	0,019694	-3,927424
19	2,835986	2,835986	0,000000	#NUM!
20	2,835986	2,835986	0,000000	#NUM!
21	2,835986	2,835986	0,000000	#NUM!
22	2,835986	2,835986	0,000000	#NUM!



Gambar I.1 Kurva adsorpsi kinetik model orde satu semu

Dari kurva diatas, nilai k_l pada masing-masing suhu dapat dihitung sebagai berikut.

$$\ln(q_e - q_t) = \ln q_e - k_1 t$$

$$y = a - bx$$

Pada suhu 30°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 1,8669 - 0,1203x$$

Sehingga diperoleh,

$$b = k_f = 0,1203 \text{ menit}^{-1}$$

$$\ln q_e = 1,8669$$

$$q_e = 6,4876 \text{ mmol/g}$$

Pada suhu 40°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 0,4181 - 0,0562x$$

Sehingga diperoleh,

$$b = k_f = 0,0562 \text{ menit}^{-1}$$

$$\ln q_e = 0,4181$$

$$q_e = 1,5190 \text{ mmol/g}$$

Pada suhu 50°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 0,4415 - 0,1081x$$

Sehingga diperoleh,

$$b = k_f = 0,1081 \text{ menit}^{-1}$$

$$\ln q_e = 1,4415$$

$$q_e = 1,5550 \text{ mmol/g}$$

Tabel I.4 Parameter adsorpsi kinetik orde satu semu gas CO₂ pada ZXF100-120J

Suhu	Orde satu semu		
	$K_f (\text{menit}^{-1})$	$q_e (\text{mmol/g})$	R^2
30°C	0,1203	6,4876	0,6478
40°C	0,0562	1,5190	0,4546
50°C	0,1081	1,5550	0,2829

2. Model orde dua semu

Model kinetik orde dua semu dapat ditentukan dengan melakukan plot linear antara t sebagai sumbu x dan t/q_t sebagai sumbu y dari persamaan berikut.

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_s q_e^2} + \frac{1}{q_e} t$$

Keterangan :

q_e : kapasitas adsorpsi pada saat kesetimbangan (mmol/g)

q_t : kapasitas adsorpsi saat waktu ke- t (mmol/g)

t : waktu adsorpsi (menit)

k_s : konstanta orde dua semu (g/mmol menit)

Tabel I.5 Hasil perhitungan orde dua semu pada suhu 30°C

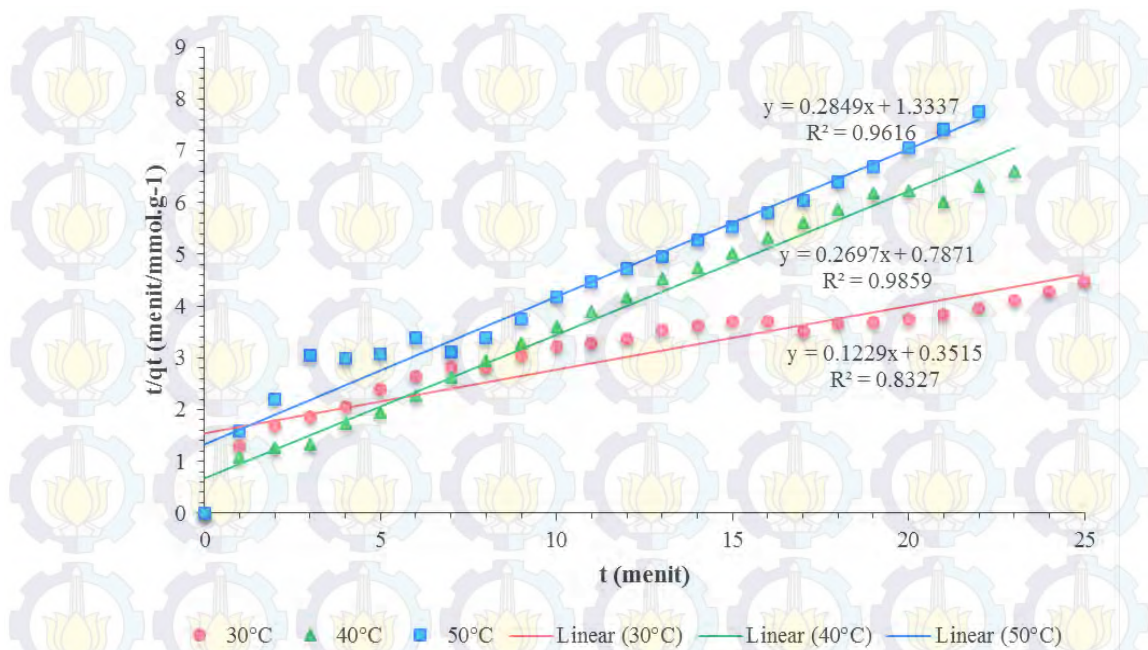
t	qt (mmol/g)	t/qt	t	qt (mmol/g)	t/qt
0	0,000000	#DIV/0!	13	3,680167	3,532448
1	0,771937	1,295441	14	3,877639	3,610444
2	1,184834	1,68800	15	4,039207	3,713600
3	1,615683	1,85680	16	4,326440	3,698190
4	1,956772	2,044183	17	4,829097	3,520327
5	2,100388	2,380512	18	4,900905	3,672791
6	2,261956	2,652571	19	5,170185	3,674916
7	2,495332	2,805237	20	5,349706	3,738523
8	2,836421	2,820455	21	5,475370	3,835357
9	2,962085	3,038400	22	5,547178	3,965980
10	3,105702	3,219884	23	5,601034	4,106384
11	3,357030	3,276705	24	5,601034	4,284923
12	3,554502	3,376000	25	5,601034	4,463461

Tabel I.6 Hasil perhitungan orde dua semu pada suhu 40°C

t	qt (mmol/g)	t/qt	t	qt (mmol/g)	t/qt
0	0,000000	#DIV/0!	12	2,875374	4,173369
1	0,925634	1,080340	13	2,875374	4,521150
2	1,575547	1,269400	14	2,954151	4,739093
3	2,245155	1,336210	15	2,993540	5,010789
4	2,304238	1,735931	16	3,013234	5,309908
5	2,579959	1,938015	17	3,032928	5,605142
6	2,658736	2,256711	18	3,072317	5,858769
7	2,658736	2,632829	19	3,072317	6,184256
8	2,717819	2,943536	20	3,210178	6,230184
9	2,737513	3,287654	21	3,485898	6,024271
10	2,776902	3,601134	22	3,485898	6,311141
11	2,816291	3,905846	23	3,485898	6,598011

Tabel I.7 Hasil perhitungan orde dua semu pada suhu 50°C

t	qt (mmol/g)	t/qt	t	qt (mmol/g)	t/qt
0	0,000000	#DIV/0!	12	2,540570	4,723348
1	0,630219	1,586750	13	2,619348	4,963067
2	0,905940	2,207652	14	2,658736	5,265659
3	0,984717	3,046560	15	2,717819	5,519130
4	1,339215	2,986823	16	2,757208	5,802971
5	1,634631	3,058795	17	2,816291	6,036307
6	1,772491	3,385066	18	2,816291	6,391384
7	2,245155	3,117824	19	2,835986	6,699611
8	2,363321	3,385066	20	2,835986	7,052222
9	2,402710	3,745770	21	2,835986	7,404833
10	2,402710	4,16196721	22	2,835986	7,757444
11	2,461793	4,468288			



Gambar I.2 Kurva adsorpsi kinetik model orde dua semu

Berdasarkan kurva diatas, nilai k_s masing-masing suhu dapat dihitung dengan persamaan sebagai berikut.

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_s q_e^2} + \frac{1}{q_e} t$$

$$y = a + bx$$

Pada suhu 30°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 0,3515 + 0,1229x$$

Sehingga diperoleh,

$$b = \frac{1}{q_e} = 0,1229$$

$$q_e = \frac{1}{0,1229} = 8,1366 \text{ mmol/g}$$

$$a = \frac{1}{k_s q_e^2} = 0,3515$$

$$\frac{1}{k_s (8,1366)^2} = 0,3515$$

$$k_s = 0,0429 \text{ g/mmol menit}$$

Pada suhu 40°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 0,7871 + 0,2697x$$

Sehingga diperoleh,

$$b = \frac{1}{q_e} = 0,2697$$

$$q_e = \frac{1}{0,2697} = 3,7078 \text{ mmol/g}$$

$$a = \frac{1}{k_s q_e^2} = 0,7871$$

$$\frac{1}{k_s (3,7078)^2} = 0,7871$$

$$k_s = 0,0917 \text{ g/mmol menit}$$

Pada suhu 50°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 1,3337 + 0,2849x$$

Sehingga diperoleh,

$$b = \frac{1}{q_e} = 0,2849$$

$$q_e = \frac{1}{0,2849} = 3,5100 \text{ mmol/g}$$

$$a = \frac{1}{k_s q_e^2} = 1,3337$$

$$\frac{1}{k_s (3,5100)^2} = 1,3337$$

$$k_s = 0,0609 \text{ g/mmol menit}$$

Laju penyerapan awal yang disimbolkan dengan h, dapat diperoleh menggunakan persamaan berikut.

$$h = k_s q_e^2$$

Sehingga diperoleh hasil sebagai berikut/

Pada suhu 30°C

$$h = k_s q_e^2$$

$$h = 0,0429 \times (8,1366)^2$$

$$h = 2,8448 \text{ mmol/g menit}$$

Pada suhu 40°C

$$h = k_s q_e^2$$

$$h = 0,0917 \times (3,7078)^2$$

$$h = 1,2606 \text{ mmol/g menit}$$

Pada suhu 50°C

$$h = k_s q_e^2$$

$$h = 0,0609 \times (3,5100)^2$$

$$h = 0,7503 \text{ mmol/g menit}$$

Tabel I.8 Parameter adsorpsi kinetik orde dua semu gas CO₂ pada ZXF100-120J

Suhu	Orde dua semu			
	k_s (g/mmol menit)	h (mmol/g menit)	q_e (mmol/g)	R^2
30°C	0,0429	2,8448	8,1366	0,8327
40°C	0,0917	1,2606	3,7078	0,9859
50°C	0,0609	0,7503	3,5100	0,9616

3. Model difusi intra partikel

Model difusi intra partikel dapat ditentukan dengan melakukan plot linear antara $t^{1/2}$ sebagai sumbu x dan q_t sebagai sumbu y menggunakan persamaan berikut :

$$q_t = k_{id} t^{\frac{1}{2}} + C$$

Keterangan :

q_t : kapasitas adsorpsi pada menit ke-t (mmol/g)

C : ketebalan batas lapisan

t : waktu adsorpsi (menit)

k_{id} : konstanta (mmol/g menit^{0,5})

Tabel I.9 Hasil perhitungan model difusi intra partikel pada suhu 30°C

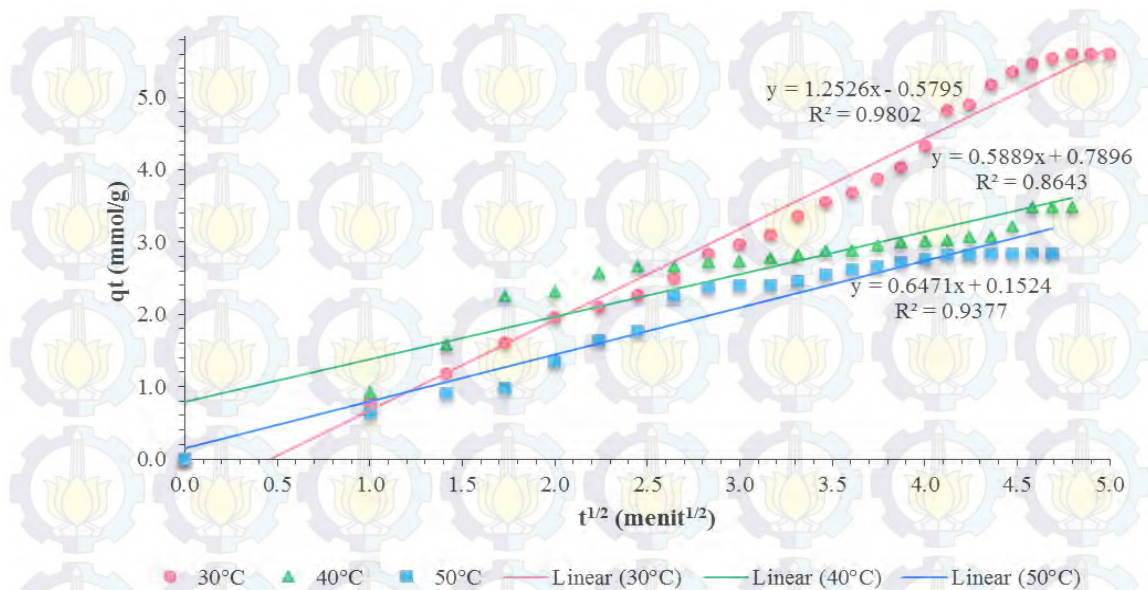
t	q_t (mmol/g)	$t^{1/2}$	t	q_t (mmol/g)	$t^{1/2}$
0	0,000000	0,000	13	3,680167	3,606
1	0,771937	1,000	14	3,877639	3,742
2	1,184834	1,414	15	4,039207	3,873
3	1,615683	1,732	16	4,326440	4,000
4	1,956772	2,000	17	4,829097	4,123
5	2,100388	2,236	18	4,900905	4,243
6	2,261956	2,449	19	5,170185	4,359
7	2,495332	2,646	20	5,349706	4,472
8	2,836421	2,828	21	5,475370	4,583
9	2,962085	3,000	22	5,547178	4,690
10	3,105702	3,162	23	5,601034	4,796
11	3,357030	3,317	24	5,601034	4,899
12	3,554502	3,464	25	5,601034	5,000

Tabel I.10 Hasil perhitungan model difusi intra partikel pada suhu 40°C

t	qt (mmol/g)	t ^{1/2}	t	qt (mmol/g)	t ^{1/2}
0	0,000000	0,000	12	2,875374	3,606
1	0,925634	1,000	13	2,875374	3,742
2	1,575547	1,414	14	2,954151	3,873
3	2,245155	1,732	15	2,993540	4,000
4	2,304238	2,000	16	3,013234	4,123
5	2,579959	2,236	17	3,032928	4,243
6	2,658736	2,449	18	3,072317	4,359
7	2,658736	2,646	19	3,072317	4,472
8	2,717819	2,828	20	3,210178	4,583
9	2,737513	3,000	21	3,485898	4,690
10	2,776902	3,162	22	3,485898	4,796
11	2,816291	3,317	23	3,485898	4,899

Tabel I.11 Hasil perhitungan model difusi intra partikel pada suhu 50°C

t	qt (mmol/g)	t ^{1/2}	t	qt (mmol/g)	t ^{1/2}
0	0,000000	0,000	12	2,540570	3,606
1	0,630219	1,000	13	2,619348	3,606
2	0,905940	1,414	14	2,658736	3,742
3	0,984717	1,732	15	2,717819	3,873
4	1,339215	2,000	16	2,757208	4,000
5	1,634631	2,236	17	2,816291	4,123
6	1,772491	2,449	18	2,816291	4,243
7	2,245155	2,646	19	2,835986	4,359
8	2,363321	2,828	20	2,835986	4,472
9	2,402710	3,000	21	2,835986	4,583
10	2,402710	3,162	22	2,835986	4,690
11	2,461793	3,317			



Gambar I.3 Kurva adsorpsi kinetik model difusi intra partikel

Berdasarkan kurva diatas, nilai k_{id} masing-masing suhu dapat dihitung dengan persamaan sebagai berikut.

$$q_t = k_{id}t^{\frac{1}{2}} + C$$

$$y = ax + b$$

Pada suhu 30°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 1,2526x - 0,5795$$

Sehingga diperoleh,

$$k_{id} = a = 1,2526$$

$$C = b = -0,5795$$

Pada suhu 40°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 0,5889x + 0,7896$$

Sehingga diperoleh,

$$k_{id} = a = 0,5889$$

$$C = b = 0,7896$$

Pada suhu 50°C

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 0,6471x + 0,1524$$

Sehingga diperoleh,

$$k_{id} = a = 0,6471$$

$$C = b = 0,1524$$

Tabel I.12 Parameter adsorpsi kinetik model difusi intra partikel gas CO₂ pada ZXF100-120J

Suhu	Difusi intra partikel		
	k_{id} (mmol/g menit ^{1/2})	C	R ²
30°C	1,2526	0,5795	0,9802
40°C	0,5889	0,7896	0,8643
50°C	0,6471	0,1524	0,9377

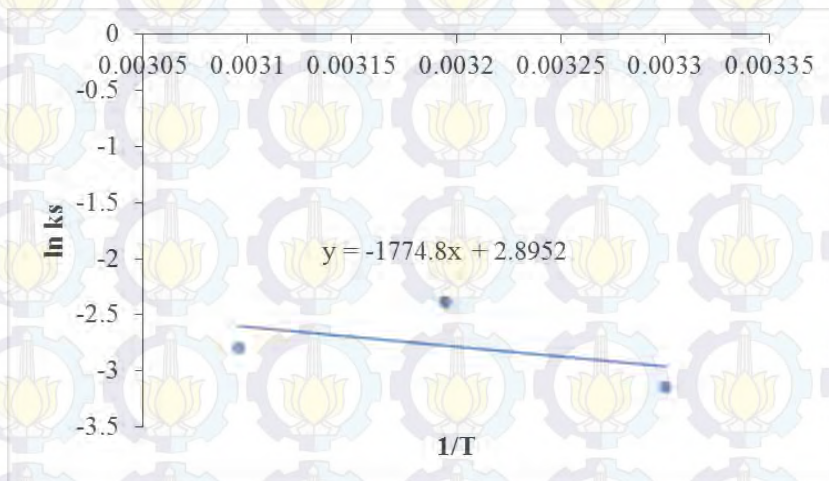
LAMPIRAN J : PERHITUNGAN ENERGI AKTIVASI

Energi aktivasi bisa dihitung berdasarkan konstanta laju adsorpsi pada orde dua semu karena memiliki koefisien korelasi rata-rata paling tinggi. Selanjutnya, hasil perhitungan pada Tabel J.1 dibuat plot linear antara $1/T$ sebagai sumbu x dan $\ln k_s$ sebagai sumbu y menggunakan persamaan berikut :

$$\ln K_s = \ln A - E_a/RT$$

Tabel J.1 Perhitungan energi aktivasi

T (K)	1/T (K ⁻¹)	k _s	ln k _s
303	0.00330033	0.0429	-3.14888
313	0.003194888	0.0917	-2.38923
323	0.003095975	0.0609	-2.79852



Gambar J.1 Kurva $\ln k_s$ sebagai fungsi suhu

Dari kurva diatas, nilai k_f pada masing-masing suhu dapat dihitung sebagai berikut.

$$\ln(k_s) = \ln A - \frac{E_a}{RT}$$

$$y = a - bx$$

Persamaan diatas analog dengan bentuk persamaan berikut.

$$y = 2,8952 - 1774,8x$$

Dengan nilai R (tetapan gas) = 8,314 J/mol K

Sehingga diperoleh,

$$E_a = 14755.69 \text{ J/mol} = 14,8 \text{ kJ/mol}$$

LAMPIRAN K : ANALISA DATA TERMODINAMIKA

Analisa termodinamika dalam penelitian ini meliputi penentuan perubahan energi bebas Gibbs (ΔG°), entropi (ΔS°) dan entalpi (ΔH°).

1. Penentuan Entalpi (ΔH°) dan Entropi (ΔS°)

Entalpi dapat ditentukan melalui plot linear antara $\ln P/P^0$ sebagai sumbu y dan $1/T$ sebagai sumbu x melalui persamaan vant Hoff berikut.

$$\ln \frac{P}{P^0} = \left(\frac{\Delta H}{RT} - \frac{\Delta S_H}{R} \right)$$

Keterangan :

ΔH : entalpi (kJ/mol)

R : Tetapan gas (8,314 J/mol K)

T : Suhu (K)

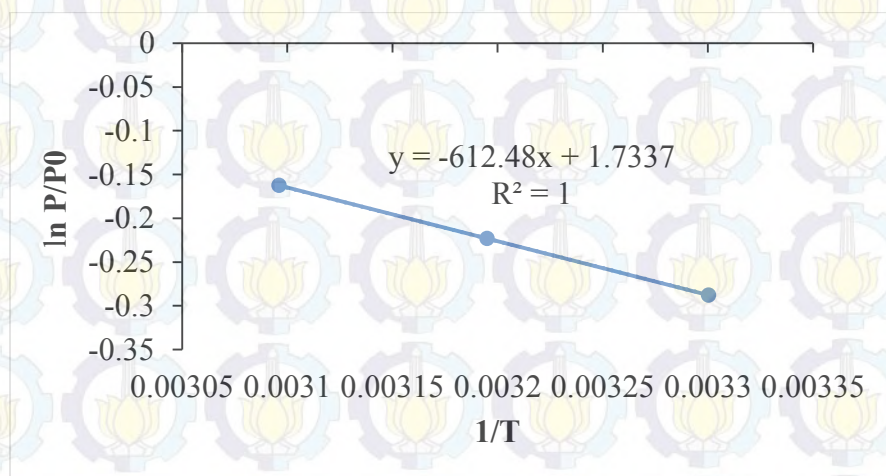
P : Tekanan sistem (bar)

P^0 : Tekanan awal (bar)

ΔS : Entropi (J/mol K)

Tabel J.1 Hasil perhitungan entalpi dan entropi

P^0 (bar)	T (K)	$1/T$ (K^{-1})	P (bar)	P/P^0	$\ln P/P^0$
1	303	0,0033	0.75	0.75	-0.28768
	313	0,0032	0.8	0.8	-0.22314
	323	0,0031	0.85	0.85	-0.16252



Gambar J.1 Grafik plot $\ln(P/P^0)$ terhadap $1/T$

Berdasarkan grafik diatas, harga ΔH dapat dihitung dari slope dan ΔS diperoleh dari intersep sebagai berikut.

$$y = -612,48x + 1,7337$$

$$y = ax + b$$

Sehingga diperoleh,

$$a = \frac{\Delta H}{R} = -612,48$$

$$\Delta H = -612,48 \times 8,314$$

$$\Delta H = -5092,16 \text{ J/mol}$$

$$\Delta H = -5,092 \text{ kJ/mol}$$

$$b = -\frac{\Delta S}{R} = 1,7337$$

$$\Delta S = -8,314 \times 1,7337$$

$$\Delta S = -14,414 \frac{\text{J}}{\text{K mol}}$$

2. Penentuan Energi Bebas Gibbs (ΔG)

Energi bebas (ΔG) dapat ditentukan dengan persamaan sebagai berikut.

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S$$

Pada suhu 30°C

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S$$

$$\Delta G = -5092,16 \text{ J/mol} - 303\text{K}(-14,414 \frac{\text{J}}{\text{K mol}})$$

$$\Delta G = -724,722 \text{ J/mol}$$

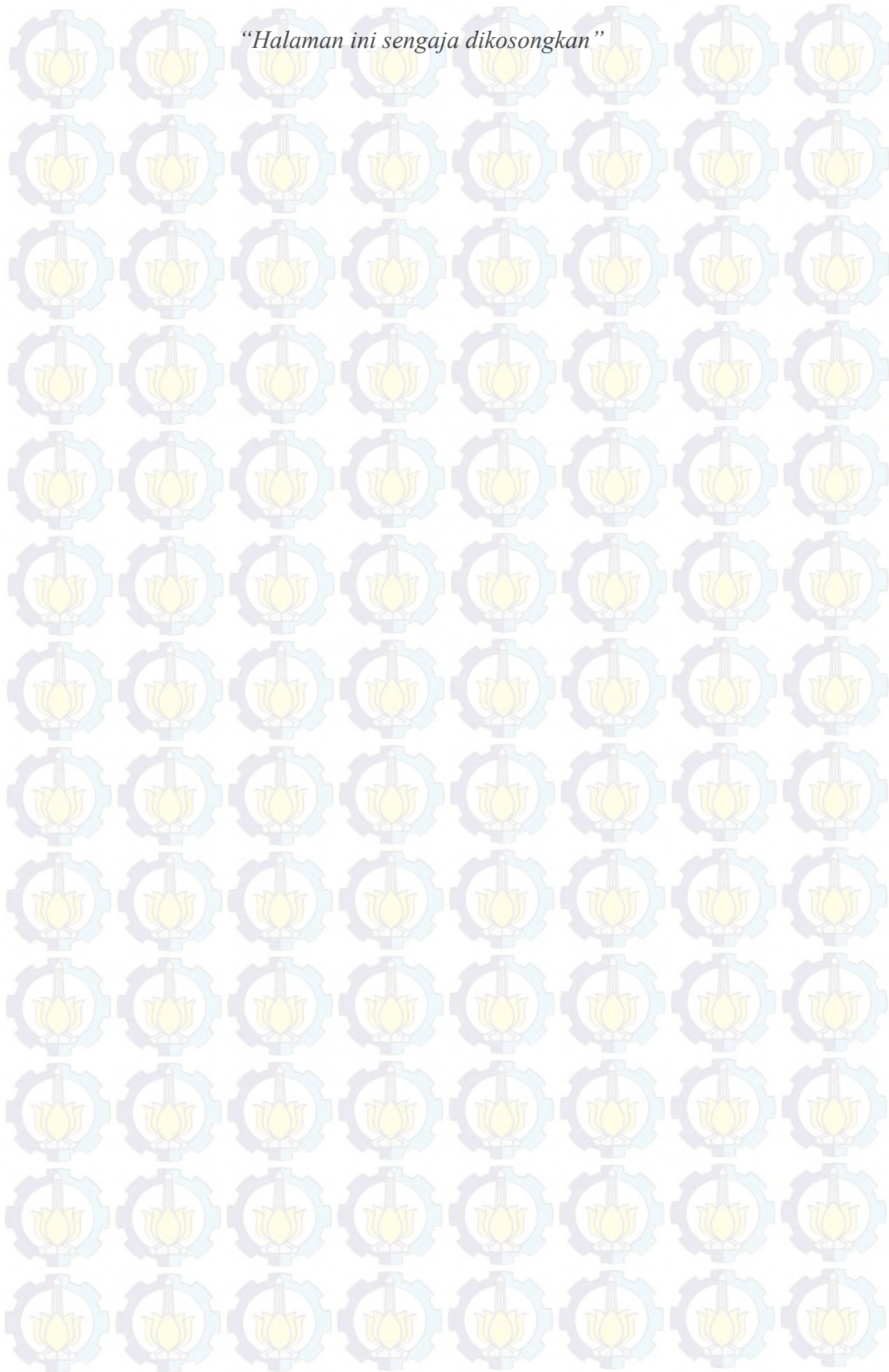
$$\Delta G = -0,724 \text{ kJ/mol}$$

Selanjutnya, dapat dihitung sesuai dengan suhu adsorpsi. Hasil perhitungan tertera pada Tabel K.1.

Tabel K.1 Hasil perhitungan termodinamika

Suhu	P_{eq} (bar)	P^o (bar)	ΔH (kJ/mol)	ΔS (kJ/mol)	ΔG (kJ/mol)
30°C	0,750	1	-5,092	-0,0144	-0,725
40°C	0,800	1			-0,581
50°C	0,850	1			-0,283

“Halaman ini sengaja dikosongkan”



BIODATA PENULIS



Penulis dilahirkan di Nganjuk, 10 September 1992 dan merupakan anak pertama. Penulis telah menempuh pendidikan formal yaitu SDN Rangkah VIII-170 Surabaya, SMPN 1 Surabaya dan SMAN 5 Surabaya. Penulis diterima di Jurusan Kimia FMIPA-ITS Surabaya melalui jalur SNMPTN dan terdaftar dengan NRP 1410 100 051. Setelah mendapatkan gelar sarjananya, penulis melanjutkan studi S2 di jurusan Kimia FMIPA-ITS dengan beasiswa fresh graduate. Penulis tercatat sebagai mahasiswa S2 Kimia angkatan 2014 dengan NRP 1414 201 030. Selama masa studi, penulis pernah menjadi pemakalah dalam konferensi internasional ICAMST 2015 di Semarang. Pada masa akhir studi, penulis melakukan penelitian mengenai pengaruh suhu dan waktu hidrotermal terhadap sintesis zeolit-X berpendukung serat *glasswool* untuk diaplikasikan sebagai material penangkap CO₂. Penelitian yang dilakukan penulis dibawah bimbingan Ibu Nurul Widiastuti, M.Si., Ph.D.

Email : anggita_rkwardani@yahoo.com / anggita.ramani@gmail.com

Telp. : 081 331 940 703